

**Bestimmung optischer Konstanten von
Festkörpern mit der Methode
der verhinderten Totalreflexion (ATR-Methode)**

Wolfgang Sohler

1974



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551924_0060

Bestimmung optischer Konstanten von Fest-
körpern mit der Methode der verhinderten
Totalreflexion (ATR-Methode)

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Wolfgang Sohler
aus Wangen/Allg. (Geburtsort)

1974

1. Berichterstatter: Universitätsdozent Dr.A.Otto
2. Berichterstatter: Prof.Dr.J.Brandmüller

Tag der mündlichen Prüfung: 18. 12. 1974



Inhaltsverzeichnis

Seite

1. Einleitung	1
2. Theorie	
2.1 Phänomenologische Theorie der Oberflächenwellen.....	3
2.1.1 Isotrope Materialien	3
2.1.2 Anisotrope Materialien	7
2.2 Die Methode der verhinderten Totalreflexion.....	8
2.3 Erweiterung der Wolter'schen Formeln für orthorhombische, absorbierende Medien	13
2.4 Optische Konstanten und Bandstruktur.....	19
3. Experiment	
3.1 Aufdampfeinrichtungen.....	21
3.1.1 Hochvakuum	21
3.1.2 Ultrahochvakuum.....	21
3.1.3 Glasreinigung.....	22
3.2 Reflektometer.....	23
3.2.1 Übersicht	23
3.2.2 Optische Komponenten.....	24
3.2.3 Elektronische Komponenten.....	27
3.2.4 Fehler der Messung.....	28
4. Untersuchung von Halbleitern im Fundamentalabsorptionsbe- reich	
4.1 Einleitung	30
4.2 "Flüssigkeitsprisma"	31
4.3 Tellur	32
4.3.1 Motivation der Untersuchung.....	32
4.3.2 Probenpräparation und Justierung.....	33
4.3.3 Anpassung theoretischer Kurven	34
4.3.4 Meßergebnisse und Vergleich mit Literaturwerten.....	36
4.3.5 Diskussion der Ergebnisse	41
4.3.6 Dispersion der Oberflächenwellen.....	44

5. Untersuchung von Isolatoren und polaren Halbleitern im Infraroten

5.1 Einleitung	46
5.2 Vielstrahlinterferenz mit Streifen gleicher chromatischer Ordnung zur Messung der Breite des Luftspaltes.....	47
5.3 α -Quarz	49

6. Untersuchung von Metallen

6.1 Einleitung	54
6.2 Dielektrische Abstandsschichten	55
6.2.1 Auswahl der Materialien	55
6.2.2 Messung der Oberflächenrauigkeit und des Brechungs- indexes	56
6.2.3 Lithiumfluorid (LiF)	57
6.2.4 Magnesiumfluorid (MgF_2).....	62
6.2.5 Kryolith ($Na_3 AlF_6$).....	63
6.2.6 Aufdampfglas	65
6.3 Aluminium im Bereich des Interbandüberganges bei 1.5 eV ...	65
6.3.1 Übersicht über bisherige Experimente	65
6.3.2 Abriß der Theorie der optischen Eigenschaften.....	68
6.3.3 Probenpräparation	70
6.3.4 Meßergebnisse	70
6.3.5 Diskussion der Ergebnisse	80
6.4 Dispersion von Oberflächenwellen auf Wolfram	83
6.4.1 Probenpräparation	83
6.4.2 Meßergebnisse und Diskussion	84
6.5 Ein ATR-Polarisator für das nahe Infrarot	86

7. Oberflächenwellen und optische Moden (Integrierte Optik)

7.1 Einleitung	90
7.2 Optische Moden in einem einseitig von Metall begrenzten Wellenleiter	92
7.3 Optische Moden in einem beidseitig von Metall begrenzten Wellenleiter	96

7.4 Ein neuartiger Koppler für die Integrierte Optik ("tapered clad coupler")	99
7.5 Bauelemente mit Metall-Grenzflächen für die Integrierte Optik (Polarisator, TE-Koppler)	106
<u>8. Zusammenfassung</u>	107
<u>Literaturverzeichnis</u>	109

1. Einleitung

In der Maxwell'schen Theorie wird die makroskopische Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit Materie durch die Materialgleichungen beschrieben. Bei nichtmagnetisierbaren, isotropen Medien genügt es, die skalare Verknüpfung zwischen dem elektrischen Feld $\underline{E}(\underline{r})$ und der dielektrischen Verschiebung $\underline{D}(\underline{r})$ zu betrachten. Sie lautet in linearer und lokaler Näherung:

$$\underline{D}(\underline{r}) = \epsilon(\omega) \underline{E}(\underline{r}) \quad (1.1)$$

Die komplexe, frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante $\epsilon(\omega)$ enthält die gesamte Information über die Wechselwirkung der Felder mit der Materie [1]. Sie ist eine reine Materialkonstante und kann als Bindeglied zwischen mikroskopischen Prozessen wie Intra- und Interbandübergängen und den makroskopischen Erscheinungen wie Absorption, Reflexion und Dispersion angesehen werden. Ihre Kenntnis erlaubt Aussagen über diese Prozesse und damit über elektronische und vibronische Eigenschaften der Materie. Daher ist $\epsilon(\omega)$ eine wichtige Größe; sie kann in weiten Frequenzbereichen mit optischen Mitteln bestimmt werden.

Das Verhalten elektromagnetischer Wellen in einem Medium mit der Dielektrizitätskonstanten $\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i \epsilon_2(\omega)$ wird durch den komplexen Brechungsindex $N(\omega) = n(\omega) + i k(\omega)$ beschrieben. Sein Realteil n , der reelle Brechungsindex, kennzeichnet die Dispersion, der Extinktionskoeffizient k die Absorption der Welle. n und k werden die optischen Konstanten genannt; sie charakterisieren eindeutig die optischen Eigenschaften eines Materials. Mit ϵ sind sie über folgende Beziehung verknüpft:

$$N = \epsilon^{1/2} : \epsilon_1 = n^2 - k^2 ; \epsilon_2 = 2nk \quad (1.2)$$

Die Bestimmung der komplexen Dielektrizitätskonstanten eines Materials läuft also auf eine Bestimmung seiner optischen Konstanten hinaus, die z.B. mit ellipsometrischen und interferometrischen Methoden, sowie durch die Untersuchung von Reflexion, Transmission

und Absorption der Probe gemessen werden können.

Es war naheliegend, die Anregung elektromagnetischer Oberflächenwellen über ein Prisma bei "verhinderter Totalreflexion" (Otto [2] 1968) ebenfalls zur Bestimmung optischer Konstanten, speziell von Festkörpern, heranzuziehen. Hierbei entsteht nämlich auf der Oberfläche der Probe ein resonanzartig überhöhtes Feld, das i.a. sehr empfindlich von deren optischen Eigenschaften (bzw. Oberflächenimpedanz) abhängt. Dieser Effekt wird in dieser Arbeit zu einer Meßmethode optischer Konstanten entwickelt. Daher werden z.T. auch detaillierte Angaben über den Weg der Entwicklung, über Schwierigkeiten und Möglichkeiten der Methode gemacht. Es werden sowohl einkristalline, wie polykristalline, isotrope wie anisotrope Substanzen im nahen Ultraviolett, Sichtbaren und Infraroten untersucht. Im Einzelfall wird sich zeigen, inwieweit die neue Methode anderen vergleichbar, unter- oder überlegen ist. Vielleicht sollte man daran erinnern, daß die Entwicklung der Ellipsometrie (Drude [185] 1890) rund 80 Jahre in Anspruch nahm, bis sie heute zu ihrer vollen Leistungsfähigkeit gefunden hat. Hier wurde versucht, das gleiche in nur drei Jahren mit der "Methode der verhinderten Totalreflexion" zu erreichen. Es ist daher nicht verwunderlich, wenn auch noch offene oder nur teilweise beantwortete Fragen bleiben.

Die einzelnen Kapitel (4.-7.) sind anfangs so allgemein wie möglich gehalten, um die Anwendungsbreite der Methode zu demonstrieren. Sie sind weitgehend in sich abgeschlossen und können deshalb auch je nach Interessenlage des Lesers für sich allein gelesen werden. Der theoretische Hintergrund (Oberflächenwellen und Methode der verhinderten Totalreflexion) wird bereits im 2. Kapitel gebracht zusammen mit der Herleitung von Formeln, die die Bestimmung optischer Konstanten auch anisotroper Materialien erlauben. Im 3. Kapitel werden die experimentellen Einrichtungen beschrieben. Das 7. Kapitel erweitert das Thema, indem der Zusammenhang von Oberflächenwellen und optischen Moden gezeigt wird, die die Grundlage für die "Integrierte Optik" bilden. Mit der Entwicklung spezieller Bauelemente für diesen jüngsten und zukunftssträchtigen Zweig der Optik wird die Arbeit abgeschlossen.

2. Theorie

2.1 Phänomenologische Theorie der Oberflächenwellen

Die Theorie elektromagnetischer Oberflächenwellen ist bereits um die Jahrhundertwende von Cohn [3] , Uller [4] , Zenneck [5] und Sommerfeld [6] erarbeitet worden, um die Ausbreitung Hertz'scher Wellen auf der Erdoberfläche zu studieren. Fano [7] zeigte 1938, daß auch im optischen Frequenzbereich analoge Oberflächenwellen existieren. In der lokalen Näherung (s.Gl.(1.1)) kann man beide Ergebnisse mit einer frequenzabhängigen, komplexen Dielektrizitätskonstanten $\epsilon(\omega)$ beschreiben [8] . Normalerweise sind drei Wellen (einfallende, reflektierte und gebrochene) notwendig, um an einer Grenzfläche zwischen Vakuum und einem Medium mit der Dielektrizitätskonstanten $\epsilon(\omega)$ die beiden voneinander unabhängigen Grenzbedingungen, nämlich die Stetigkeit der Tangentialkomponenten von $\underline{E}(\underline{r})$ und $\underline{H}(\underline{r})$ (magnetische Feldstärke) zu erfüllen. Im Fall der p-Polarisation (der elektrische Vektor liegt in der Einfallsebene, der magnetische Vektor parallel zur Oberfläche) gibt es eine weitere Möglichkeit: bereits zwei Wellen (einfallende und gebrochene) genügen zur Befriedigung der Stetigkeitsforderungen. Der Betrag der Feldstärke fällt exponentiell mit dem Abstand von der Grenzfläche ab, vorausgesetzt, daß $\epsilon(\omega)$ komplex ist. Diese beiden Wellen, die infolge ihrer p-Polarisation mit einer zweidimensionalen (in lokaler Näherung) Oberflächenpolarisationsladung verknüpft sind, bilden zusammen die Oberflächenwelle. Im Grenzfall eines reellen $\epsilon > 0$ entartet die Oberflächenwelle zum bekannten Brewsterfall [8], bei dem die einfallende Welle nur eine gebrochene und keine reflektierte hervorruft.

2.1.1 Isotrope Materialien

Oberflächenwellen auf der Grenzfläche eines isotropen Materials mit der komplexen Dielektrizitätskonstanten $\epsilon(\omega)$ zum Vakuum [8] bzw. zu einem Dielektrikum [9] sind theoretisch am gründlichsten behandelt worden. Wir beschränken uns hier auf den Fall der

Grenzfläche ($z=0$) zum Vakuum. Die Felder einer Oberflächenwelle, die sich in x -Richtung mit Wellenvektor q ausbreitet, werden dann durch folgende Ausdrücke beschrieben:

$$\underline{E}_V = E_V \left(-\frac{q_{zV}}{\omega/c}, 0, \frac{q}{\omega/c} \right) e^{i(qx - \omega t)} e^{iq_{zV}z} \quad (2.1)$$

$$\underline{H}_V = E_V (0, -1, 0) e^{i(qx - \omega t)} e^{iq_{zV}z}$$

$$\text{für } z > 0 \text{ (Vakuum) mit } q_{zV} = \left(\frac{\omega^2}{c^2} - q^2 \right)^{1/2}$$

$$\underline{E}_M = E_M \left(\frac{q_{zM}}{\xi^{1/2} \omega/c}, 0, \frac{q}{\xi^{1/2} \omega/c} \right) e^{i(qx - \omega t)} e^{-iq_{zM}z} \quad (2.2)$$

$$\underline{H}_M = E_M (0, -\xi^{1/2}, 0) e^{i(qx - \omega t)} e^{-iq_{zM}z}$$

$$\text{für } z < 0 \text{ (Medium) mit } q_{zM} = \left(\xi \frac{\omega^2}{c^2} - q^2 \right)^{1/2}$$

Ein qualitatives Bild der Felder gibt Abb. 2.1 .

Aus den Stetigkeitsbedingungen der Tangentialkomponenten folgt implizit die Dispersionsbeziehung $\omega(q)$:

$$q = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\xi(\omega)}{\xi(\omega)+1} \right)^{1/2} \quad (2.3)$$

Sie wurde ausführlich von Otto [8] diskutiert. Die wichtigsten Resultate konnte er sehr anschaulich graphisch darstellen (s. Abb. 2.2): Alle ξ -Werte, die eine konstante räumliche Dämpfung der Oberflächenwellen bewirken, liegen in der komplexen ξ -Ebene auf den ausgezogenen Kreisen. Daran angetragen ist das jeweilige Dämpfungsverhältnis $D = \text{Im}(q) / \text{Re}(q)$. Die ξ -Werte, die eine konstante Phasengeschwindigkeit zur Folge haben, liegen auf den gestrichelten Kreisen. Angetragen ist hier die entsprechende Phasengeschwindigkeit $v_{ph} = \omega / \text{Re}(q)$ in Einheiten der Lichtgeschwindigkeit.

Die Betrachtung der Dämpfung ist wesentlich, da zwar formal jeder beliebige, komplexe ξ -Wert einen komplexen Wellenvektor q gemäß

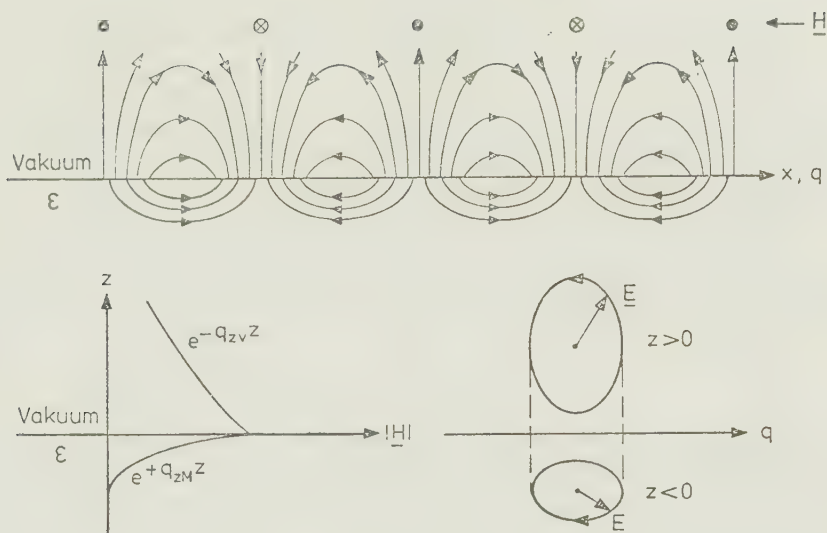


Abb. 2.1: Aus Otto [10] :

Qualitatives Feldlinienbild einer Oberflächenwelle auf einem Medium mit negativer, reeller Dielektrizitätskonstante.

Gleichung (2.3) liefert, der Begriff der Oberflächenwelle jedoch nur dann physikalisch sinnvoll ist, wenn sie sich mindestens über eine Strecke mehrerer Wellenlängen ausbreiten kann. Mathematisch formuliert ergibt das die Forderung: $D = \text{Im}(q) / \text{Re}(q) \ll 1$! (Ausbreitung längs der Oberfläche gemäß $\exp(+iqx)$).

Sie wird z.B. erfüllt für $\epsilon_1 < -1$ und $\epsilon_2 \ll |\epsilon_1|$ (s. Abb. 2.2). Dieser Fall ist am intensivsten in den letzten Jahren im optischen Bereich untersucht worden [10]. Oberflächenwellen auf einem Medium, das durch eine solche Dielektrizitätskonstante charakterisiert wird, werden als Fanowellen bezeichnet. Sie beschreiben phänomenologisch Oberflächenplasmaschwingungen auf Metallen und dotierten Halbleitern, sowie Oberflächenpolaritonen auf Isolatoren und polaren Halbleitern [s. 10].

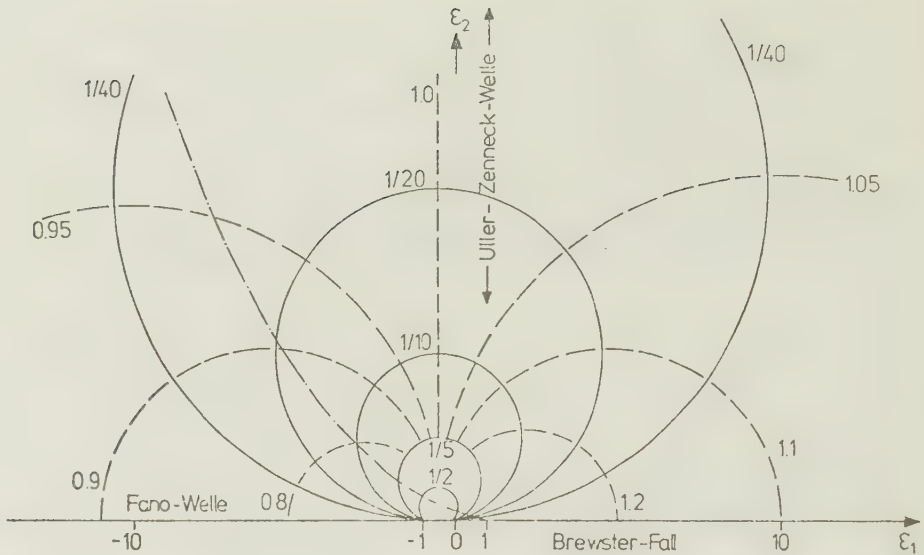


Abb. 2.2: Aus Otto [8] :

Kurven konstanter Dämpfung (ausgezogen) mit Angabe von $D = \text{Im}(q)/\text{Re}(q)$ und konstanter Phasengeschwindigkeit (gestrichelt) mit Angabe von v_{ph}/c der Oberflächenwellen in der komplexen ϵ -Ebene.

Bei dem von Uller und Zenneck behandelten Fall ($\epsilon_1 \approx 1$) muß ϵ_2 groß sein (s. Abb. 2.2) um eine ungedämpfte Ausbreitung von Oberflächenwellen zu ermöglichen. Dies erscheint zunächst unverständlich zu sein, da die Absorption im Medium durch ϵ_2 bestimmt wird. Trotzdem wird die Dämpfung klein, da bei großem ϵ_2 das Feld der Oberflächenwelle kaum mehr in das Medium eindringt. Es wird fast ausschließlich im nichtabsorbierenden Vakuum transportiert. Im optischen Bereich wurden bei Metallen solche Wellen oberhalb der Plasmafrequenz von Silber beobachtet [11]. Bei Halbleitern führten wir die ersten Untersuchungen von Uller-Zenneck-Wellen im Bereich der Fundamentalabsorption von Tellur durch (s. Kap. 4) [12, 13].

Die Brewster-Moden ($\epsilon_1 > 0$ und $\epsilon_2 \ll \epsilon_1$) und bei $\epsilon_2 = 0$ der bekannte Brewster-Fall werden als sogenannte Pseudo-Brewster-Methode [14] zur Untersuchung optischer Eigenschaften von Festkörpern herangezogen.

Die Phasengeschwindigkeit der Oberflächenwellen auf Medien mit $\epsilon_1 \ll -1/2$ ist kleiner als die Lichtgeschwindigkeit (s. Abb. 2.2: gestrichelte Kurven), so daß Fanowellen mit ebenen Lichtwellen nicht angeregt werden können. Dies entzog sie lange Zeit der experimentellen Untersuchung; erst die Prismenmethode der verhinderten Totalreflexion [2] (s. Kap. 2.2) erlaubte auf optischem Wege ihre Anregung.

2.1.2 Anisotrope Materialien

Oberflächenwellen auf anisotropen Materialien sind im allgemeinen wesentlich komplizierter als auf isotropen Medien. Sie sind nicht mehr rein p - polarisiert; ihre Felder bestehen im Medium aus zwei Anteilen mit unterschiedlichen Abklingkonstanten und nichtverschwindender Divergenz des elektrischen Feldes [15]. Relativ einfach ist dagegen das Verhalten von Oberflächenwellen auf optisch einachsigen Kristallen, deren kristallographische c-Achse parallel oder senkrecht zur Oberfläche steht [16]. Noch übersichtlicher wird die Situation, wenn ihre Ausbreitungsrichtung parallel oder senkrecht zur c-Achse liegt. In dieser Geometrie sind die meisten Untersuchungen der Dispersion von Fanowellen (Oberflächenpolaritonen) in Reststrahlenbanden vorgenommen worden, um die zugehörigen Phononen genauer zu studieren ([17] und dort zitierte Literatur; s. auch Kap. 5).

Für die oben skizzierte Geometrie läßt sich die Dispersionsrelation in folgender Form schreiben:

$$q = \frac{\omega}{c} \left(\eta \epsilon_z \frac{\epsilon_x - \eta}{\epsilon_x \epsilon_z - \eta^2} \right)^{1/2} \quad (2.4)$$

Dabei ist ϵ_x die komplexe Komponente des dielektrischen Tensors in Ausbreitungsrichtung, ϵ_z senkrecht dazu. η ist die (reelle) Dielektrizitätskonstante des angrenzenden, isotropen Mediums ($\eta = 1$ im Fall von Vakuum). Bei einem optisch einachsigen

Kristall, der als Tensorkomponenten nur $\epsilon_{||}$ (parallel zur c-Achse und $\epsilon_{\perp}$ (senkrecht zur c-Achse) besitzt, ergeben sich folgende drei Möglichkeiten des Dispersionsverhaltens, je nachdem auf welcher Fläche und in welche Richtung die Oberflächenwellen oder Oberflächenpolaritonen laufen: (Wir verwenden die beiden Ausdrücke Oberflächenwellen und Oberflächenpolaritonen in Anlehnung an [10] weitgehend synonym. Allgemein wird der gekoppelte Zustand zwischen einer polaren Anregung und einem Photon als Polariton bezeichnet.)

a) $\epsilon_x = \epsilon_z = \epsilon_{\perp}$: Ordentliches Oberflächenpolariton.

Gegenüber dem isotropen Fall hat sich nichts geändert.

b) $\epsilon_x = \epsilon_{||}$; $\epsilon_z = \epsilon_{\perp}$: Außerordentliches Oberflächenpolariton.

c) $\epsilon_x = \epsilon_{\perp}$; $\epsilon_z = \epsilon_{||}$: Außerordentliches Oberflächenpolariton.

Im Fall b) und c) können definitive Stoppunkte im ω - q -Diagramm der Dispersionskurve von Fanowellen auftreten [18]. Liegt die c-Achse in der Oberfläche des sogenannten oberflächenaktiven Mediums, ergeben sich nur die Möglichkeiten a) und b). Diese Fälle haben wir am Beispiel des Tellurs im Bereich seiner Fundamentalabsorption ausführlich untersucht (s. Kap. 4).

2.2 Die Methode der verhinderten Totalreflexion

(auch ATR-Methode = Attenuated Total Reflection)

Die Dispersionskurve von Oberflächenplasmaschwingungen (Fanowellen) auf einem Metall, das durch das Modell des freien Elektronengases beschrieben wird ($\epsilon = 1 - \omega_p^2/\omega^2$; ω_p -Plasmafrequenz), ist in Abb. 2.3 qualitativ dargestellt. Sie verläuft im ω - q -Diagramm rechts von der sogenannten "Lichtgeraden" $\omega = c \cdot q$. Fanowellen können mit ebenen Lichtwellen nicht angeregt werden, da deren Wellenvektorkomponente parallel zur Oberfläche gegeben ist durch

$$q_{||} = \frac{\omega}{c} \sin \alpha \quad (2.5)$$

Hierbei ist α der Einfallswinkel der Lichtwelle bezüglich der Oberflächennormalen. $q_{||}$ ist immer kleiner als ω/c und kann daher die Resonanzbedingung

$$q_{||} = q_{\text{Oberflächenwelle}} \quad (2.6)$$

nicht erfüllen. Vergrößert man jedoch $q_{||}$ durch ein vorge-

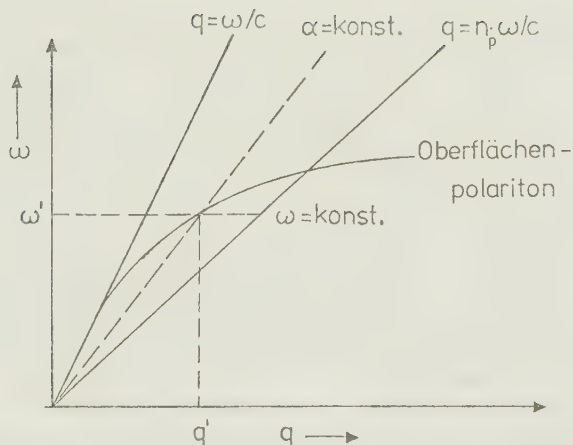


Abb. 2.3: Qualitatives Bild der Dispersion einer Oberflächenwelle. Weitere Erläuterungen im Text.

schaltetes Prisma mit dem Brechungsindex n_p (s. Abb. 2.4), ergibt sich:

$$q_{||} = \frac{\omega}{c} n_p \sin \alpha \quad (2.7)$$

$q_{||}$ wird größer als ω/c , wenn

$$n_p \sin \alpha > 1 \quad (2.8)$$

Das bedeutet allerdings Totalreflexion, so daß zur Anregung einer Oberflächenwelle nur die quergedämpfte, inhomogene Welle unter der Prismenbasis in Frage kommt. Dadurch ergeben sich experimentelle Probleme, da man das oberflächenaktive Medium bis auf einen Abstand von ungefähr einer Wellenlänge dem Koppelprisma nähern muß, um optimale Resonanz zu erzielen. Diese zeigt sich dann darin, daß die Totalreflexion p-polarisierten Lichtes bei einem bestimmten Winkel α verhindert wird, der über Gleichung (2.5) die Resonanzbedingung (2.6) erfüllt und größer als der Grenzwinkel α_t der Totalreflexion ist (s. Abb. 2.4). Die Absorption im oberflächenaktiven Medium kann vollständig sein ($R_p = 0$), wenn alle experimentellen Parameter richtig eingestellt sind. Bisher wurde eine Absorption durch Anregung von

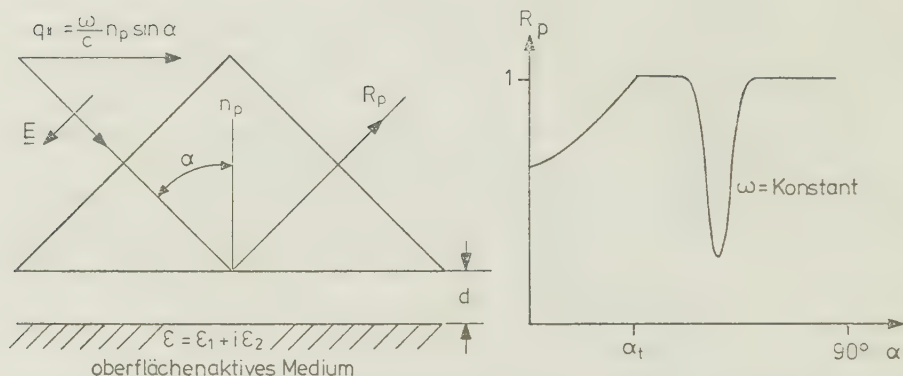


Abb. 2.4: Methode der verhinderten Totalreflexion (ATR-Methode) mit Luftspalt.

Oberflächenwellen, meist nur als kleiner Effekt, in charakteristischen Energieverlustspektren von Elektronen [19], in der Reflektivität optischer Gitter [20] (Wood'sche Anomalien) und im Reflexionsspektrum rauher Metallspiegel bei der Oberflächenplasmafrequenz [21] beobachtet.

Es gibt eine zweite Anordnung, Oberflächenwellen mit Hilfe eines Prismas anzuregen (Abb. 2.5) [22-24]. Hierzu wird eine dünne (einige hundert Å dicke) Schicht des oberflächenaktiven Mediums auf die Basisfläche des Prismas aufgebracht, so daß die querge-dämpfte Welle Oberflächenwellen an der unteren Schichtseite (Grenzfläche zur Luft) anregen kann. Auch hier muß natürlich wieder die Resonanzbedingung für Frequenz und Wellenvektor (2.6) erfüllt sein. Diese Anordnung eignet sich jedoch nur für Materialien, die aufgedampft werden können, vorzugsweise für Metalle. Wir haben bei unseren Untersuchungen zur Bestimmung optischer Konstanten aus Gründen, die noch dargestellt werden, ausschließlich die zuerst skizzierte Methode angewandt.

Die Experimente können auf zweierlei Weise durchgeführt werden (s. auch Abb. 2.3): 1) Bei fester Frequenz ω wird der Wellenvektor q des anregenden Lichtes über den Einfallswinkel

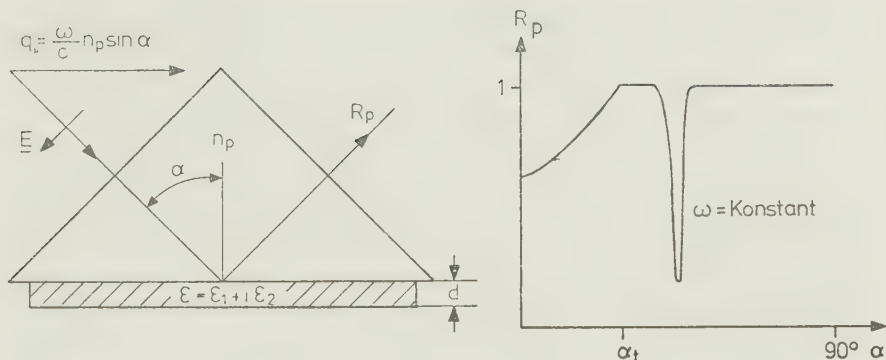


Abb. 2.5: Methode der verhinderten Totalreflexion (ATR-Methode) ohne Luftspalt.

variiert (horizontale, gestrichelte Gerade im ω - q -Diagramm). Bei $q_{||} = q'$ tritt Resonanz mit der Oberflächenwelle ein.

2) Bei festem Einfallswinkel α wird die Frequenz des anregenden Lichtes durchgeföhren (geneigte, gestrichelte Linie im ω - q -Diagramm). Bei $\omega = \omega'$ tritt Resonanz ein. Beide Methoden sind geeignet, auch Moden mit kleinerem q links von der Lichtgeraden anzuregen (Uller-Zenneck- und Brewster-Wellen). In etwas modifizierter Form finden wir die Prismenmethode in der Integrierten Optik [z.B. 25] (s.auch Kap. 7) wieder, wo sie große praktische Bedeutung erlangt hat, um einen Laserstrahl zur Nachrichtenverarbeitung in dünne dielektrische Schichten einzukoppeln.

Die Messung des Resonanzwinkels erlaubt, die Dispersion der Oberflächenwellen über Gleichung (2.5) sehr genau zu messen [2,18]. Der Einfluß des Prismas, der eine Verschiebung des Resonanzwinkels bewirken kann, ist hierbei gegebenenfalls zu berücksichtigen [26]. Die im reflektierten, p -polarisierten Licht auftretende Resonanzstruktur ist in den für absorbierende, gegebenenfalls anisotrope Medien und mehrere Grenzflächen erweiterten Fresnel'schen Formeln enthalten [27, 28]. Das erlaubt, durch

Anpassen theoretischer Kurven an die experimentellen die optischen Konstanten des oberflächenaktiven Mediums und gegebenenfalls des angrenzenden Dielektrikums zu bestimmen, wenn alle anderen Parameter bekannt sind. Mit guter Genauigkeit ist dies nur möglich, wenn das Experiment bei fester Frequenz ausgeführt wird und dadurch $R_p(\alpha)$ - Kurven anzupassen sind. Der Fehler dieser Meßmethode hängt davon ab, wie exakt Wellenlänge, Brechungsindizes, Dicke der Zwischenschicht und Einfallswinkel bekannt sind und wie gut man im Experiment die idealen Annahmen der Theorie approximiert. Diese sind: scharfe Frequenz, keine Divergenz des einfallenden Parallelstrahls, Homogenität von Brechungsindex und Dicke der Abstandsschicht, unendlich ausgedehnte ebene Wellen und ideal plane Grenzflächen. Dadurch sind die Anforderungen an die Güte des Experimentes nicht gering.

Ein Spektrum optischer Konstanten wird Punkt für Punkt gewonnen: Für jede Frequenz wird eine Resonanzkurve ausgemessen und ihr eine berechnete Kurve angepaßt. Da die Reflektivität s - polarisierten Lichtes im Winkelbereich der Resonanz keine Strukturen zeigt, kann man, statt der absoluten Reflektivität p - polarisierten Lichtes, auch das Reflektivitätsverhältnis von p - zu s - polarisiertem Licht messen. Der hierin auftretenden, kaum modifizierten Resonanzkurve wird wieder eine berechnete Kurve angepaßt. Experimentell läßt sich die Verhältnismessung wesentlich genauer durchführen; wir haben sie bei all unseren Untersuchungen angewandt.

Bis heute existieren lediglich zwei Arbeiten, in denen mit der Anordnung nach Abb. 2.5 im sichtbaren Spektralbereich und nahen Ultraviolett optische Konstanten von Silber [29] und Li und Na [30, 31] bestimmt wurden. Mit der Anordnung nach Abb. 2.4, die wir mit dieser Arbeit weiterentwickelt haben, sind bisher lediglich an Gold Experimente durchgeführt worden [32], deren Ergebnisse ungenauer sind, da $R_p(\omega)$ und nicht $R_p(\alpha)$ - Kurven gemessen wurden.

2.3 Erweiterung der Wolter'schen Formeln für orthorhombische, absorbierende Medien.

Zur Berechnung der ATR-Resonanzkurven von anisotropen, absorbierenden Materialien (s.Kap. 4 und 5) lagen keine allgemeinen Ausdrücke vor. Lediglich für Spezialfälle von Reflexion und Transmission anisotroper, meist optisch einachsiger Medien fanden wir Arbeiten in der Literatur [34-37]. Daher war es notwendig, wenigstens für den theoretisch am einfachsten zu behandelnden Fall orthorhombischer Medien, Formeln für Reflexion und Transmission eines Vielschichtsystems zu entwickeln. Ausgangspunkt waren hierbei die Wolter'schen Rekursionsformeln [27] eines Vielschichtsystems aus isotropen Materialien. Sie wurden von uns für orthorhombische Medien erweitert, deren dielektrische Hauptachsen in bzw. senkrecht zur Oberfläche der einzelnen Schichten und in bzw. senkrecht zur Einfallsebene liegen [28]. Im einfachsten Fall einer einzigen Grenzfläche zwischen zwei isotropen, nicht absorbierenden Stoffen reduzieren sie sich zu den bekannten Fresnel'schen Formeln [38].

Der komplexe dielektrische Tensor $\underline{\underline{\epsilon}}$ von Kristallen mit orthorhombischer oder höherer Symmetrie kann diagonalisiert werden [39]. Fallen die dielektrischen Hauptachsen mit den x-, y- und z-Achsen eines rechtwinkligen Koordinatensystems zusammen, kann man schreiben:

$$\underline{\underline{\epsilon}} = \begin{pmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \underline{D}(\underline{r}) = \underline{\underline{\epsilon}} \underline{E}(\underline{r}) \quad (2.9)$$

$\underline{D}(\underline{r})$ besteht hier aus der dielektrischen Verschiebung und der Stromdichte der Maxwell'schen Gleichungen, wie in [34, 39] diskutiert wird. Bei nichtmagnetischen Materialien ist $\mu=1$ und deshalb $\underline{H}(\underline{r})=\underline{B}(\underline{r})$. Die Felder $\underline{E}(\underline{r})$, $\underline{D}(\underline{r})$ und $\underline{H}(\underline{r})$ haben denselben Phasenfaktor

$$\exp(-i(\frac{\omega}{c} \underline{q} \cdot \underline{r} - \omega t)) \quad (2.10)$$

Dabei ist $\underline{q}$ ein normalisierter, komplexer Wellenvektor, dessen Realteil senkrecht auf den Ebenen konstanter Phase steht. Aus den Maxwell'schen Gleichungen folgt:

$$\begin{aligned}\underline{q} \times \underline{H}(\underline{r}) &= -\underline{D}(\underline{r}) \\ \underline{q} \times \underline{E}(\underline{r}) &= \underline{H}(\underline{r})\end{aligned}\quad (2.11)$$

Eliminiert man $\underline{H}(\underline{r})$ aus den beiden Gleichungen (2.11), um die Beziehung zwischen $\underline{q}$ und $\underline{\epsilon}$ zu erhalten, ergibt sich:

$$(\underline{q} \cdot \underline{E}(\underline{r})) \cdot \underline{q} - \underline{q}^2 \underline{E}(\underline{r}) = -\underline{\epsilon} \underline{E}(\underline{r}) \quad (2.12)$$

Wir spezialisieren uns auf den Fall, daß der Wellenvektor $\underline{q}$ in der x-z-Ebene liegt, d.h. $\underline{q} = (q_x, 0, q_z)$. Dann folgt $\underline{q} \cdot \underline{E}_o(\underline{r}) = 0$ mit $\underline{E}_o(\underline{r}) = (0, E_y, 0)$, so daß man Gleichung (2.12) für die beiden unabhängigen Polarisierungen von $\underline{E}(\underline{r})$, nämlich $\underline{E}(\underline{r}) = \underline{E}_o(\underline{r})$ und $\underline{E}(\underline{r}) = \underline{E}_e(\underline{r}) = (E_x, 0, E_z)$ getrennt betrachten kann. $\underline{E}_o(\underline{r})$ beschreibt den ordentlichen Strahl, der sich im anisotropen Medium wie in einem isotropen Material gemäß der Dispersion $\underline{q}^2 = \epsilon_y$ verhält. Für diese Polarisation, mit Grenzflächen parallel zur x-y-Ebene, kann man die Wolter'schen Formeln ohne Änderung anwenden. Wir beschränken uns deshalb auf die Polarisationsrichtung parallel zur Einfallsebene, d.h. $\underline{E}(\underline{r}) = \underline{E}_e(\underline{r})$, was dem außerordentlichen Strahl entspricht. Damit folgt aus (2.12):

$$q_x^2 \epsilon_x + q_z^2 \epsilon_z - \epsilon_x \epsilon_z = 0 \quad (2.13)$$

Dies ist die komplexe Fresnel-Gleichung für unsere spezielle Ausbreitungsrichtung. Bei vorgegebenem ϵ_x und ϵ_z gibt es vier Richtungen, in denen eine Wellenausbreitung möglich ist. Wenn $\underline{q}_1 = (q_{1x}, 0, q_{1z})$ eine Lösung von (2.13) ist, sind $\underline{q}_2 = (q_{1x}, 0, -q_{1z})$, $\underline{q}_3 = -\underline{q}_1$ und $\underline{q}_4 = -\underline{q}_2$ ebenfalls Lösungen. In einem Vielschichtsystem anisotroper Medien mit den Grenzflächen parallel zur x-y-Ebene (Abb. 2.6), muß die Wellenvektorkomponente q_x aller Lösungen in jeder Schicht gleich sein. (Snellius'sche Brechungsgesetz) Das folgt aus den Grenzbedingungen für die Tangentialfelder. Dadurch wird die Zahl der möglichen Ausbreitungsrichtungen

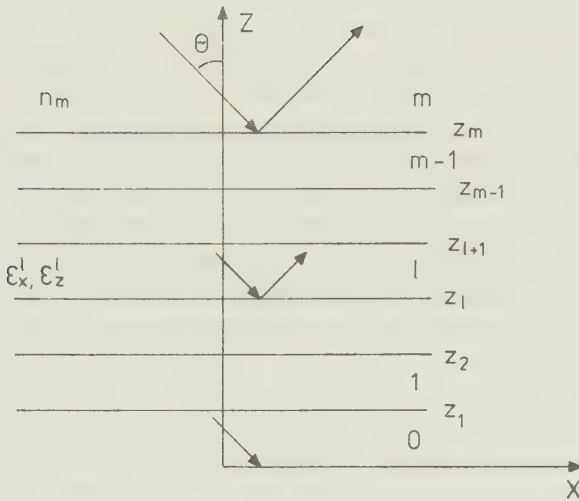


Abb. 2.6: Vielschichtsystem mit m Grenzflächen. Das m -te Medium ist transparent und isotrop (Brechungsindex n_m). Die übrigen Medien sind anisotrop mit mindestens orthorhombischer Symmetrie. Die dielektrischen Hauptachsen liegen parallel zu den Koordinatenachsen.

auf zwei reduziert. In jedem Medium weist eine aufwärts, die andere abwärts. Wir nehmen an, daß das m -te (das oberste) Medium transparent und daher der Einfallswinkel θ reell ist, so daß für q_x gilt:

$$q_x = n_m \cdot \sin \theta = U \quad U \text{ reell} \quad (2.14)$$

n_m ist der Brechungsindex des m -ten Mediums. Damit liefert Gleichung (2.13):

$$q_z^2 = \epsilon_x \left(1 - \frac{U^2}{\epsilon_z} \right) \quad (2.15)$$

in Übereinstimmung mit [35]. q_z hat die zwei Wurzeln der rechten Seite der Gleichung (2.15) als Lösung. Sie beschreiben eine "einfallende" und eine "reflektierte" Welle in jedem Medium. Normalerweise sollte eine "einfallende" Welle in unserem Koordinaten-

system beschrieben werden durch $\text{Re}(q_z) < 0$ und $\text{Im}(q_z) > 0$; eine "reflektierte" Welle dagegen durch $\text{Re}(q_z) > 0$ und $\text{Im}(q_z) < 0$. Dann nämlich werden die Wellen exponentiell in der Richtung gedämpft, in die sich die Ebenen konstanter Phase im Lauf der Zeit ausbreiten. Gleichung (2.15) liefert diese Lösungen im Fall isotroper Medien. (Man erinnere sich, daß $\text{Im}(\epsilon_j) < 0$, wegen der Zeitabhängigkeit $\exp(+i\omega t)$ und daß $\epsilon_j^{1/2} = n_j - ik_j$ mit $n_j, k_j > 0$; $j = x, y, z$ [27]). Im Fall anisotroper Medien muß die Lösung mit $\text{Re}(q_z) < 0$ jedoch nicht unbedingt mit $\text{Im}(q_z) > 0$ zusammenfallen. Wir müssen vielmehr fordern, daß eine "einfallende" Welle durch eine negative z-Komponente des zeitlich gemittelten Poyntingvektors, eine "reflektierte" durch eine positive z-Komponente charakterisiert sei. Das ist äquivalent mit $\text{Im}(q_z) > 0$ für eine "einfallende" und $\text{Im}(q_z) < 0$ für eine "reflektierte" Welle, wie wir noch zeigen werden. "Einfallend" bedeutet also auch Dämpfung in (-Z)-Richtung, "reflektiert" in (+Z)-Richtung. Der zeitlich gemittelte Poyntingvektor $\underline{P}(\underline{r})$ wird durch folgenden Ausdruck gegeben [38] :

$$\underline{P}(\underline{r}) = \frac{c}{8\pi} \text{Re} \left(\underline{E}(\underline{r}) \times \underline{H}^*(\underline{r}) \right) \quad (2.16)$$

$$= \frac{c}{8\pi} |\underline{H}_0|^2 \left(\frac{U \cdot \text{Re}(\epsilon_z)}{|\epsilon_z|^2}, 0, \text{Re} \left(-\frac{1}{\epsilon_x^{1/2}} \left(1 - \frac{U^2}{\epsilon_z} \right)^{1/2} \right) \exp(2\frac{\omega}{c} \text{Im}(q_z) Z) \right)$$

$\underline{H}_0$ ist die Amplitude von $\underline{H}(\underline{r})$ ($\underline{r}=0$ und $t=0$). Mit $\tilde{\alpha} = (1 - \frac{U^2}{\epsilon_z})$ gilt für q_z : $q_z = \epsilon_x^{1/2} \cdot \tilde{\alpha}^{1/2}$. Wir definieren eine Funktion $P := \tilde{\alpha}^{1/2} / \epsilon_x^{1/2}$, deren Realteil die z-Komponente des zeitlich gemittelten Poyntingvektors $\underline{P}(\underline{r})$ ist, abgesehen von der positiven Konstanten $|\underline{H}_0|^2 \frac{c}{8\pi}$ und dem positiven Faktor $\exp(2\frac{\omega}{c} \text{Im}(q_z) Z)$. Abb. 2.7 veranschaulicht die komplexen Funktionen. Punktstriche, bzw. gestrichelte Linien und Flächen werden von Bild zu Bild aufeinander abgebildet. Wir sehen, daß die Wurzel von $\tilde{\alpha}$ mit $\text{Im}(\tilde{\alpha}^{1/2}) > 0$ und $\text{Re}(\tilde{\alpha}^{1/2}) < 0$ die Lösung für eine "einfallende" Welle liefert mit $\text{Re}(P) < 0$ und $\text{Im}(q_z) > 0$. Die zweite Wurzel von $\tilde{\alpha}$ ergibt die Lösung für eine "reflektierte" Welle mit $\text{Re}(P) > 0$ und $\text{Im}(q_z) < 0$. $\text{Re}(q_z)$ kann also positiv oder negativ für eine "einfallende" wie für eine "reflektierte" Welle sein, je nach Größe von ϵ_x und ϵ_z . Eine ähnliche Situation wurde bei der Unter-

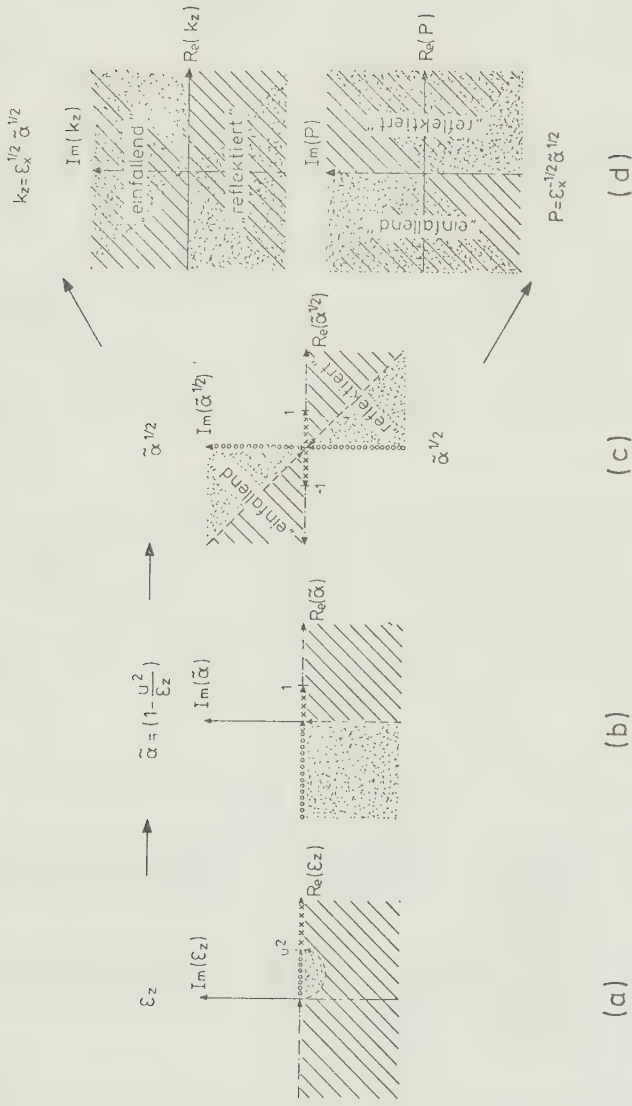


Abb. 2.7: Die Bildung der z-Komponente des Wellenvektors sowie des zeitlich gemittelten Poyntingvektors wird veranschaulicht. Punktierte und gestrichelte Flächen, sowie besonders gekennzeichnete Linien in den jeweiligen komplexen Ebenen werden aufeinander abgebildet. Eine "einfallende" Welle ist durch $\text{Im}(q_z) > 0$ und $\text{Re}(P) < 0$, eine "reflektierte" durch $\text{Im}(q_z) < 0$ und $\text{Re}(P) > 0$ charakterisiert.

suchung von Oberflächenwellen auf isotropen, absorbierenden Medien gefunden [8]. E_x und H_y können jetzt eindeutig miteinander verknüpft werden. Gleichung (2.11) liefert:

$$E_x = \frac{q_z}{\epsilon_x} H_y = \mp \frac{1}{\epsilon_x^{1/2}} \left(1 - \frac{U^2}{\epsilon_z} \right)^{1/2} H_y \quad (2.17)$$

Das obere Vorzeichen gilt für eine "einfallende", das untere für eine "reflektierte" Welle mit der Konvention, daß die Wurzeln mit negativem Imaginärteil gewählt werden. Gleichung (2.17) ist gültig in jedem Medium der Abb. 2.6 durch Anfügen eines Index l an E_x , H_y , ϵ_x und ϵ_z mit $l=0,1,2,\dots, m$. Den Proportionalitätsfaktor zwischen E_x^l und H_y^l bezeichnen wir wie Wolter (s. Gleichungen (4.8) und 4.9) in [27] mit g_l :

$$g_l = \frac{1}{(\epsilon_x^l)^{1/2}} \left(1 - \frac{U^2}{\epsilon_z^l} \right)^{1/2} = \left(\frac{\epsilon_z^l - U^2}{\epsilon_x^l \epsilon_z^l} \right)^{1/2} \text{ mit } \operatorname{Re}(g_l) > 0 \quad (2.18)$$

Dieser Ausdruck reduziert sich zu Wolter's Gleichung (4.10) im Fall isotroper Medien. Die Abkürzung g_l für die z -Abhängigkeit der Felder ergibt folgenden Ausdruck in Analogie zu Wolter's Gleichung (5.4):

$$g_l = i \frac{U}{c} (\epsilon_x^l)^{1/2} \left(1 - \frac{U^2}{\epsilon_z^l} \right)^{1/2} \text{ mit } \operatorname{Re}(g_l) > 0 \quad (2.19)$$

Mit diesen verallgemeinerten Ausdrücken für g_l und g_l bleiben alle weiteren Formeln für p -polarisierte (TH-) Wellen in Wolter's Artikel gültig. Sie erlauben die Anwendung seiner Rekursionsformeln und damit die Berechnung von Reflexion und Transmission eines Vielschichtsystems aus anisotropen Medien.

Als Beispiel geben wir die Reflektivität einer Grenzfläche zum Vakuum und eines drei-Medien-Systems (z.B. dünne Schicht oder ATR-Anordnung) als wichtigste Fälle an:

a) Grenzfläche zum Vakuum:

$$R_{TH} = |r_1|^2 = \left| \frac{g_1 - g_0}{g_1 + g_0} \right|^2 = \left| \frac{\cos \theta (\epsilon_x \epsilon_z)^{1/2} - (\epsilon_z - \sin^2 \theta)^{1/2}}{\cos \theta (\epsilon_x \epsilon_z)^{1/2} + (\epsilon_z - \sin^2 \theta)^{1/2}} \right|^2 \quad (2.20)$$

mit $g_0 = \left(\frac{\epsilon_z - \sin^2 \theta}{\epsilon_x \epsilon_z} \right)^{1/2}$ und $g_1 = \cos \theta$, $\text{Re}(g_0) > 0$.

Dieses Ergebnis stimmt mit [34] überein.

b) Zwei Grenzflächen:

(2.21)

$$R_{TH} = |r_2|^2 = \left| \frac{(g_2 - g_1)(g_1 + g_0) \exp(g_1 d) + (g_2 + g_1)(g_1 - g_0) \exp(-g_1 d)}{(g_2 + g_1)(g_1 + g_0) \exp(g_1 d) + (g_2 - g_1)(g_1 - g_0) \exp(-g_1 d)} \right|^2$$

d ist die Dicke des Mediums 1.

Die Formel unter b) wurde von uns programmiert und für Anpassungsrechnungen zur Bestimmung optischer Konstanten von Tellur (s. Kap. 4), sowie für die Deutung und Interpretation der experimentellen Spektren von Falge an α -Quarz [40] (s. auch Kap. 5) benutzt.

2.4 Optische Konstanten und Bandstruktur

Die experimentelle Bestimmung optischer Konstanten hat das Ziel, die komplexe Dielektrizitätskonstante über Gleichung (1.2) zu ermitteln, die Aussagen über Intra- und Interbandübergänge ermöglicht. Intrabandübergänge z.B. bei Metallen werden mit der einfachen Drude-Theorie beschrieben [41].

$$\epsilon_1 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad \epsilon_2 = \frac{\gamma}{\omega} \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (2.22)$$

Plasmafrequenz ω_p und reziproke Relaxationszeit $\gamma = 1/\tau$ können so bestimmt werden (s. auch Kap. 6).

Die Interbandübergänge geben folgenden Beitrag zu ϵ_2 [1]:

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{8\pi^2 e^2 \hbar^2}{m^2 \omega^2} \sum_{j' j} \frac{2}{(2\pi)^3} \int \left| \langle j', \underline{q} | \underline{e} \cdot \text{grad} | j, \underline{q} \rangle \right|^2 \frac{df}{|\text{grad}_{\underline{q}}(E_{j'}(\underline{q}) - E_j(\underline{q}))|} \quad (2.23)$$

$E_{j'} - E_j = \hbar \omega$

Dabei ist e die Elementarladung, m die freie Elektronenmasse, $\hbar$ das Planck'sche Wirkungsquantum und $\underline{e}$ ein Einheitsvektor in Richtung der Polarisation der einfallenden Strahlung. Die Summation

geht über alle j (besetzte Bänder) und j' (unbesetzte Bänder) . Die Integration wird über Flächen konstanter Energie $\hbar\omega = E_{j'} - E_j$ im $\underline{q}$ -Raum ausgeführt. $|j, \underline{q}\rangle$ bezeichnet den Elektronenzustand (Wellenfunktion) im j -ten Band mit Wellenvektor $\underline{q}$.

Die Matrixelemente $M_{j, j'} = \langle j', \underline{q} | \underline{e} \cdot \text{grad} | j, \underline{q} \rangle$ geben an, ob ein Übergang aus Symmetriegründen erlaubt oder verboten ist.

Sie sind häufig nur schwach $\underline{q}$ - abhängig, so daß Strukturen in ϵ_2 hauptsächlich durch die kombinierte Zustandsdichte $Z_{jj'}(\omega)$

$$Z_{jj'}(\omega) = \int \frac{df}{|\text{grad}_{\underline{q}}(E_{j'}(\underline{q}) - E_j(\underline{q}))|} \quad (2.24)$$

$$E_{j'} - E_j = \hbar\omega$$

bestimmt werden. Singularitäten in deren Integrand treten auf, wenn $\text{grad}_{\underline{q}}(E_{j'}(\underline{q}) - E_j(\underline{q})) = 0$ ist. Das ist der Fall bei Übergängen zwischen Bandextrema, bei denen bereits die Gradienten der Einzelenergien verschwinden (meistens an hochsymmetrischen Punkten in der Brillouinzone). Das ist weiterhin erfüllt, wenn die einzelnen Gradienten zweier Terme, die um die absorbierte Energie auseinander liegen, gleich sind: $\text{grad}_{\underline{q}}(E_{j'}(\underline{q})) = \text{grad}_{\underline{q}}(E_j(\underline{q}))$. Diese Situation liegt bei parallel laufenden Bändern vor (s. z.B. Aluminium; s.Kap. 6) . Man kann zeigen, daß an all diesen kritischen Punkten ("van Hove Singularitäten") $Z_{jj'}$ und damit auch ϵ_2 nicht unendlich werden, sondern nur Maxima aufweisen [1] .

3. Experiment

3.1 Aufdampfeinrichtungen

Die dielektrische Abstandsschicht einer Prismenprobe und gegebenenfalls das oberflächenaktive Medium (Metall) (s. Abb. 2.4) werden im Vakuum auf die Basisfläche des Prismas aufgedampft. Je nach Material und Anforderungen an die Reinheit der herzustellenden Schichten wurde die Präparation im Hochvakuum oder im Ultrahochvakuum vorgenommen.

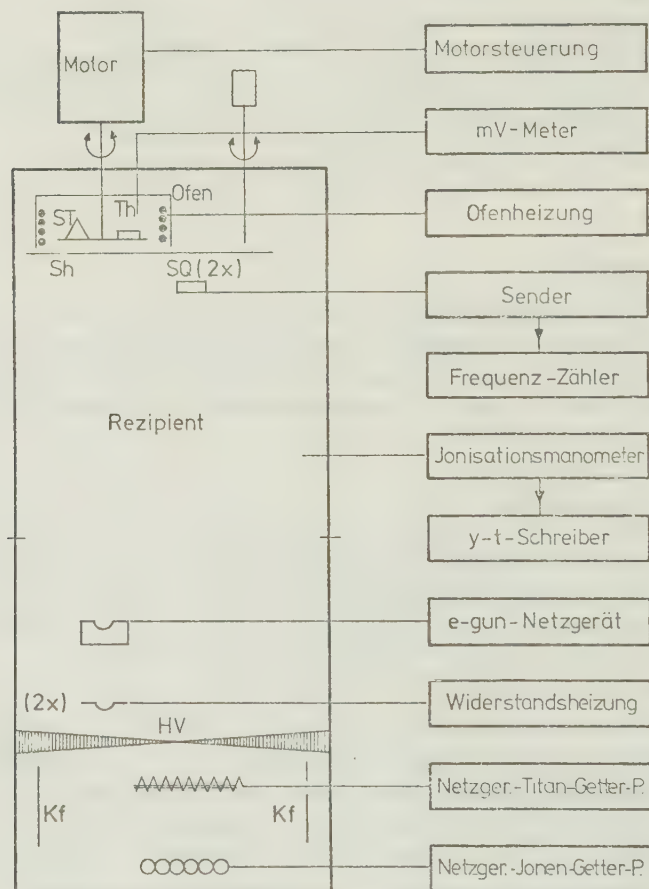
3.1.1 Hochvakuum

Uns stand ein Leybold-Pumpstand mit einem Enddruck von etwa $1 \cdot 10^{-6}$ torr zur Verfügung. Seine hohe Saugleistung ermöglichte kurze Aufdampfzyklen. Während des Aufdampfens konnte die Schichtdicke mit einem Schwingquarz kontrolliert werden.

3.1.2 Ultrahochvakuum

Schematisch ist unsere Ultrahochvakuumanlage in Abb. 3.1 dargestellt. Sie besteht im wesentlichen aus einem Uni - 5 Pumpstand der Firma Riber, den wir mit speziellen Einbauten für unsere Aufdampfzwecke ausrüsteten. Er besitzt zwei Kryo-Vorpumpen, eine 200 l/sec Ionen-Getter-Pumpe und eine Titan-Sublimationspumpe mit großflächiger Kühlfalle, die mit flüssigem Stickstoff gefüllt werden kann. Der abnehmbare Glaszylinder mit Edelstahldeckel und das Schieberventil zwischen Pumpe und Rezipient sind mit Viton gedichtet; trotzdem erreichten wir nach Ausheizen des gesamten Pumpstandes bei $\sim 150^{\circ}\text{C}$ während 20 Stunden einen Enddruck bis zu $5 \cdot 10^{-10}$ torr. Der Druck wurde mit einer offenen Ionisationsmanometerröhre der Firma Varian und über den Strom der Ionenpumpe gemessen. Er kann mit einem Schreiber zeitabhängig aufgenommen werden.

Abb. 3.1 ULTRAHOCHVAKUUMANLAGE



HV: Hauptventil
Sh: Shutter
Kf: Kühlfalle

SQ: Schwingquarz
Th: Thermoelement
ST: Substratteller

Zwei Joule-Effekt-Aufdampfquellen ("Schiffchen" mit Widerstandsheizung) wurden eingebaut, sowie eine 4 kW-Elektronenstrahlkanone der Firma Varian. Die Substrate (Prismen und Glasplättchen) werden auf einem Teller befestigt, der 30 cm über den Aufdampfquellen drehbar gelagert ist. Die Position des Tellers bezüglich der Quellen kann verändert werden, um unter einem Winkel aufzudampfen. Über eine Magnet-Durchführung können die Substrate gedreht werden; die Drehzahl des Motors läßt sich stufenlos von 1 - 20 Hz über eine Thyristorsteuerung einstellen.

Der Drehteller sitzt in einem Ofen, der unten ganz oder teilweise mit einer Blende (Shutter) abgeschlossen werden kann. Durch Strahlung werden die Substrate aufgeheizt. Die Temperatur wird aus einer Eichkurve abgelesen, die ihre Abhängigkeit vom Heizstrom angibt. Diese Eichkurve wurde mit einem Thermoelement ausgemessen, an dem ein Kupferblock hing. Eine Messung z.B. der Prismentemperatur durch direkten Kontakt eines Thermoelementes ist nicht möglich, da die Substrate während der Aufdampfung gedreht werden. Durch die Strahlungsheizung sind Temperaturen bis zu 350°C möglich, ohne das Vakuum entscheidend zu verschlechtern.

Über zwei Schwingquarze kann jeder Aufdampfvorgang kontrolliert werden. Der zugehörige Sender wurde nach einem Vorschlag von Sauerbrey [42] gebaut.

3.1.3 Glasreinigung

Vor jeder Bedampfung wurden die Substrate (Prismen, Planplatten) in einem Ultraschallbad der Firma Bandelin (Sonorex NK 51) mehrere Minuten lang mit einem speziellen Lösungsmittel (R 33 Tickopur) gereinigt. Anschließend wurden die Gläser in destilliertem Wasser unter Ultraschalleinwirkung gespült. Schließlich wurden sie in analysenreinem Alkohol gewaschen und mit nachgereinigtem Stickstoff trocken geblasen.

3.2 Reflektometer

Die Aufgabe des Reflektometers ist es , an einer Prismenprobe das Reflexionsverhältnis R_p/R_s von p- zu s- polarisiertem, parallelem und monochromatischem Licht in Abhängigkeit vom Einfallswinkel zu messen. Dies sollte mit großer Genauigkeit über einen breiten Spektralbereich möglich sein. Heute ist das Reflektometer mit allen notwendigen Komponenten ausgerüstet, um von $\sim 2000 \text{ \AA}$ im Ultravioletten bis zu $5,6 \mu$ im Infraroten Spektroskopie zu betreiben.

3.2.1 Übersicht

Eine Übersicht über den experimentellen Aufbau des Reflektometers wie über die Steuerung und Meßsignalverarbeitung gibt Abb. 3.2 . Das Licht einer Lampe wird auf den Eintrittsspalt eines Monochromators abgebildet. Eine Spiegeloptik hinter dem Austrittsspalt erzeugt ein Parallelbündel. Ein Chopper, der gleichzeitig das Referenzsignal für die phasenempfindliche Verstärkung liefert, unterbricht periodisch den Lichtweg. Das Filter unterdrückt höhere spektrale Ordnungen, die in einem Gittermonochromator entstehen. Der Polarisator P_1 steht fest unter 45° zur Einfallsebene der Prismenprobe; P_2 kann in p- oder s- Stellung (der elektrische Vektor liegt parallel oder senkrecht zur Einfallsebene) gedreht werden. Dadurch ist die Intensität des p- polarisierten gleich der des s- polarisierten Lichtes (hinter P_2), was die Messung sehr vereinfacht. Sie erfolgt punktwise: Ein spezieller Einfallswinkel wird durch Drehen des Goniometertisches , auf dem das Prisma justiert ist, über ein Motorpotentiometer eingestellt; ein analoges Signal wird auf die x-Achse eines Schreibers gegeben. Der Detektor wird ins Maximum der reflektierten Intensität auf einem Kreisring nachgefahren. Über einen Vorverstärker (Philips PM 6045) gelangt das Meßsignal in den phasenempfindlichen Hauptverstärker (Philips PM 7835) . Es wird digitalisiert und gespeichert. Nun wird der Polarisator P_2 um 90° gedreht; das Meßsignal der

REFLEKTOMETER



HSp: Hohlspiegel ES: Eintrittsspalt La: Lampe G: Gitter	AS: Austrittsspalt Sh: Shutter PSp: Planspiegel Ch: Chopper	Fi: Filter Bl: Blende P: Polarisator Go: Goniometer	Pr: Prisma PM: Photomultiplier M: Motor MP: Motorpotent.	VV: Vorverstärker
--	--	--	---	-------------------

VV: Vorverstärker

zweiten Polarisationsrichtung kommt nach der identischen Gesamtverstärkung in einen zweiten Speicher. Beide Größen werden durcheinander dividiert [43] ; eine dem Quotienten analoge Spannung wird auf die y-Achse des Schreibers (MFE 815 M Plotamatic) gegeben. Dessen Ordinate läßt sich so eichen, daß direkt das Reflexionsverhältnis angezeigt wird. Dieser Wert wird ausgedruckt und der nächste Winkel eingestellt. Die experimentellen Spektren werden so punktweise auf Din A 4 - Papier gegeben; sie können direkt mit den theoretisch berechneten Kurven verglichen werden, die vom Computer im gleichen Format gezeichnet werden.

3.2.2 Optische Komponenten

a) Monochromator

Das Herzstück des Reflektometers ist ein 0,3 m Gittermonochromator der Firma Mc Pherson, Modell 218, mit der hohen Lichtstärke $f/5.3$. Er ist prinzipiell einsetzbar im Wellenlängenbereich von 1050 Å bis 16 μ .

b) Gitter

Zum Betrieb des Monochromators standen uns vier Bausch- und Lomb-Gitter zur Verfügung (s.Tab. 3.1), mit denen der Spektralbereich von etwa 0,2 - 6 μ überstrichen werden kann.

Gitter	1	2	3	4
Blazewellenlänge	3000 Å	7615 Å	1,7 μ	4 μ
Linien/mm	1200	300	75	11,58
Auflösung (10 μ Spaltbreite)	0,6 Å	2,4 Å	9,6 Å	62 Å

Tabelle 3.1: Eigenschaften der verwendeten Gitter

Höchste spektrale Auflösung war für unsere Experimente nicht erforderlich. Dagegen sollte die Winkeldivergenz des in der Spiegeloptik erzeugten Parallelbündels kleiner als $3'$ bleiben. Das beschränkt die zulässige Spaltbreite auf $\sim 40 \mu$. Die Forderung nach einem guten Signal-Rausch-Verhältnis aller Messungen bei vorgegebener Lampe und Detektor bestimmt nun die maximale Dispersion der Gitter und legt damit die Linienzahl/mm fest (s. Tab. 3.1) .

c) Lampen

Eine 150 W Xenon-Hochdrucklampe (Osram XBO 150W/1) benutzten wir im Bereich von $2000 \text{ \AA} - \sim 1 \mu$. Zwischen $4000 \text{ \AA}$ und $2,5 \mu$ setzten wir eine 150 W Wolfram-Bandlampe mit aufgeschmolzenem Quarzfenster (Osram Wi 17/G) ein. Für das längerwellige Infrarot (bis 10μ) hatten wir eine Wolfram-Bandlampe (Osram Wi 17/G) mit einem BaF_2 -Fenster versehen , das mit "Gupalon 30" [44] auf den abgeschliffenen Glastubus geklebt worden war. Die Xenonlampe wird über eine Quarzlinse, die Wolframbandlampe über einen Spiegel auf den Eintrittsspalt des Monochromators abgebildet.

d) Spiegeloptik

Um chromatische Fehler zu vermeiden, konstruierten wir eine Spiegeloptik: zwei sphärische und zwei plane mit MgF_2 geschützte Aluminium-Spiegel erzeugen ein Parallelbündel von etwa 5 mm Breite. Ziel dieser Konstruktion war es, bei nahezu senkrechtem Lichteinfall auf die Hohlspiegel zu arbeiten, um Abbildungsfehler, die die Divergenz des Parallelbündels vergrößern würden, klein zu halten. Die Konstruktion des Monochromators (innen liegender Spalt) verbot es, mit nur einem sphärischen Spiegel auszukommen.

e) Filter

Mit einem Satz von Kantenfiltern (Cut-On-Filter) können wir die höheren spektralen Ordnungen und kurzwelliges

Streulicht aus dem Monochromator unterdrücken. Zwei Verlauffilter mit einer mittleren Transmission von etwa 40 % erlauben sogar, im Bereich von $4000 \text{ \AA} - 2 \mu$, das Streulicht gänzlich auszuschalten. Der Streulichtanteil ist allerdings für normale Messungen vernachlässigbar klein.

f) Polarisatoren

Der Polarisator P_1 ist ein Glan-Thomson-Prisma mit hoher Transmission im Bereich von $2000 \text{ \AA} - 2,3 \mu$. Der Polarisator P_2 wird gedreht; daher darf er kein Glan-Thomson-Prisma sein, das prinzipiell das durchgelassene Lichtbündel bei der Drehung verschiebt. Das ist für die meisten Anwendungen ohne Belang; bei Verwendung von Photomultipliern, deren Kathoden örtlich nicht homogen empfindlich sind, kann das jedoch zu Fehlern von mehreren Prozent führen. Deshalb nehmen wir dichroitische Folien als zweiten Polarisator (Käsemann P-W 40, P-W 44, P-IR 2). Ihre geringere Transmission und begrenzten spektralen Arbeitsbereich muß man in Kauf nehmen.

g) Goniometer

Die Prismen wurden auf einem Goniometer der Firma Miller montiert, das visuell eine Winkelauflösung von $20''$ gestattet; sie wurde durch den Antrieb über ein Motorpotentiometer und elektrische Messung des Winkels noch gesteigert.

h) Prismen, Planplatten

Die verwendeten 60° -Prismen aus IRG-2 und IRG-3 Glas (Schott) hatten eine Winkelgenauigkeit von $\pm 1'$. Die Planheit der Prismenflächen, wie der Planplatten aus BK-7 Glas (Schott) betrug $\lambda/10$.

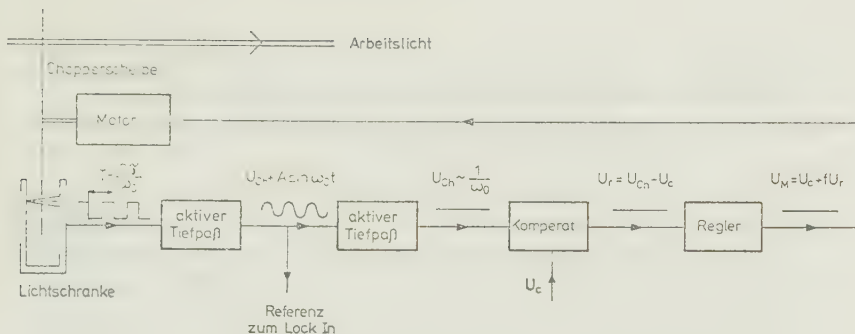


Abb. 3.3: Chopper-Regelkreis und Erzeugung des Referenzsignals

3.2.3 Elektronische Komponenten

a) Chopper

Der Chopper unterbricht mechanisch über eine durchbrochene Scheibe den Lichtweg der einfallenden Strahlung mit einer stabilisierten Frequenz von etwa 1000 Hz. Gleichzeitig liefert er eine sinusförmige Spannung gleicher Frequenz als Referenzsignal an den phasenempfindlichen (Lock-In-)Verstärker (s. Abb. 3.3). Dazu wird eine separate Lichtschranke von der Chopperscheibe im gleichen Takt wie das Arbeitslicht unterbrochen. Ein aktiver Tiefpaß filtert aus der entstehenden Rechteckspannung die zwei niedrigsten Fourierkomponenten, d.h. den Gleichspannungsanteil und die Grundschwingung, aus. Diese geht als Referenzsignal zum Lock-In-Verstärker. Der Gleichspannungsanteil, der frequenzabhängig ist, wird durch einen weiteren aktiven Tiefpaß abgetrennt und mit der Motor-Sollspannung verglichen. Die Differenz zwischen beiden steuert den Regler, der den Choppermotor versorgt.

b) Detektoren

Tabelle 3.2 gibt einen Überblick über die in den verschiedenen Spektralbereichen verwendeten Detektoren:

Detektor	Spektralbereich
Photomultiplier: EMI 6256 S	2000 Å - 6000 Å
Photomultiplier: RCA 7102	3000 Å - 1,1 μ
PbS-Photowiderstand: Valvo RS 70.1002	1 - 3 μ
InSb-Photowiderstand (77°K): Mullard RPY 31	1 - 5,6 μ

Tabelle 3.2: Detektortypen mit zugehörigem Spektralbereich.

c) Steuergerät

Ein zentrales Gerät erlaubt die Steuerung von Detektorvortrieb, Winkelvortrieb, Polarisatordrehung, Chopperbetrieb, Shutterstellung und Monochromatorantrieb.

3.2.4 Fehler der Messung

Die Polarisatorstellungen von P_1 und P_2 wurden mit einem Hilfspolarisator nach Kohlrausch [45] auf $\pm 1/4^\circ$ genau geeicht. Dadurch war die Intensität des p- polarisierten Lichtes hinter P_2 bis auf $\pm 1\%$ gleich der des s- polarisierten Lichtes. Dies konnte direkt über eine Messung ohne Prisma durch Drehen von P_2 überprüft werden. Der Fehler, der durch die Polarisatoren hervorgerufen wird, geht als systematischer Fehler in die Verhältnismessungen ein. Er ist jedoch klein gegen den Fehler einer normalen I_0 -Bestimmung mit all ihren Problemen, die bei einer absoluten Reflektivitätsmessung unumgänglich wäre. Die Fehler, die bei der Speicherung und Division der Meßsignale auftreten, sind vernachlässigbar.

Für p- und s- Polarisation wird die identische Gesamtverstärkung benutzt. Daher müssen hierbei nur Fehler in der Linearität der Verstärker berücksichtigt werden. Die Nicht-

linearität von Vorverstärker und Hauptverstärker ist jeweils kleiner als 1 %, die des Schreibers kleiner als 0,5 %. Sie können leichte Verzerrungen der Resonanzkurven bewirken. Während also der relative Fehler einer Verhältnismessung vom Wert 1 nur ± 1 % beträgt, kann er bei kleineren Verhältnissen bis zu 5 % steigen. Hinzu kommen noch statistische Schwankungen des Meßsignals (Rauschen), die aber durch Wahl einer geeigneten Zeitkonstanten klein gehalten werden konnten. Sie mitteln sich größtenteils heraus, da eine glatte Kurve durch die einzelnen Meßpunkte gelegt wird.

4. Untersuchung von Halbleitern im Fundamentalabsorptionsbereich

4.1 Einleitung

Auf Oberflächen von Halbleitern sollten nach der Theorie (s.Kap. 2.1) im Fundamentalabsorptionsbereich ($\epsilon_2 \gg |\epsilon_1|$) Uller-Zenneck-Wellen möglich sein. Aus experimentellen Gründen gelang es bisher nicht, diese anzuregen.

Halbleiter werden meistens in einkristalliner Form untersucht [46] ; damit scheidet als experimentelle Anordnung zur Anregung von Oberflächenwellen die einfache Form mit Prisma und Aufdampfschicht (s.Abb. 2.5) aus. Sie kann zur Untersuchung der optischen Eigenschaften polykristalliner und amorpher Schichten herangezogen werden, die in jüngster Zeit viel Interesse fanden [47] . Wir beschränken uns hier auf den Fall massiver Einkristalle. Ihre Oberflächen müßten optisch plan sein, um die Anwendung der ATR-Methode mit Prisma, Luftspalt und Probe nach Abb. 2.4 zu erlauben. Nur dann wäre es möglich, den Spalt in der geforderten, homogenen Breite von etwa einer Wellenlänge einzustellen.

Halbleiteroberflächen können jedoch nur in den seltensten Fällen eben genug präpariert werden. Beim Spalten von Einkristallen entstehen Stufen der unterschiedlichsten Höhe [48] . Chemisches Ätzipolieren erzeugt eine wellige Oberfläche [48, 49] . Mechanisches Polieren ist nur bei sehr harten Materialien möglich. Doch selbst wenn es gelänge, ideale Oberflächen herzustellen, wären noch nicht alle Probleme gelöst. Dies zeigt das Beispiel der ATR-Untersuchungen an polierten α -Quarz-Flächen [17, 18, 40] : Eine definierte Einstellung des Abstandes zwischen Prisma und Probe bereitet so große Schwierigkeiten (s. jedoch Kap. 5.2), daß bisher auf die Bestimmung optischer Konstanten durch eine Anpassung theoretischer Spektren an die experimentellen Ergebnisse verzichtet werden mußte (s. auch Kap.5).

Die Probleme bei der Herstellung eines gleichmäßig breiten Spaltes lassen sich jedoch umgehen. Eine niedrigbrechende,

dielektrische Schicht bekannter Dicke wird auf den Kristall aufgedampft und ersetzt so den Luftspalt. Wenn dann eine hochbrechende Flüssigkeit gegen das Glasprisma ausgetauscht wird, paßt sie sich in genau dem richtigen Abstand der Probenoberfläche an. Dieser Gedanke war der Anstoß zur Konstruktion des sogenannten "Flüssigkeitsprismas", das sehr genaue Messungen und damit auch die Bestimmung optischer Konstanten von Einkristallen mit der ATR-Methode ermöglicht.

4.2 "Flüssigkeitsprisma"

Das "Flüssigkeitsprisma" (Abb. 4.1) besteht im wesentlichen aus einem Quarzhalbzylinder mit halbzyklindrischer Aussparung, die mit dem hochbrechenden Pumpenöl DC 705 gefüllt ist. Eine

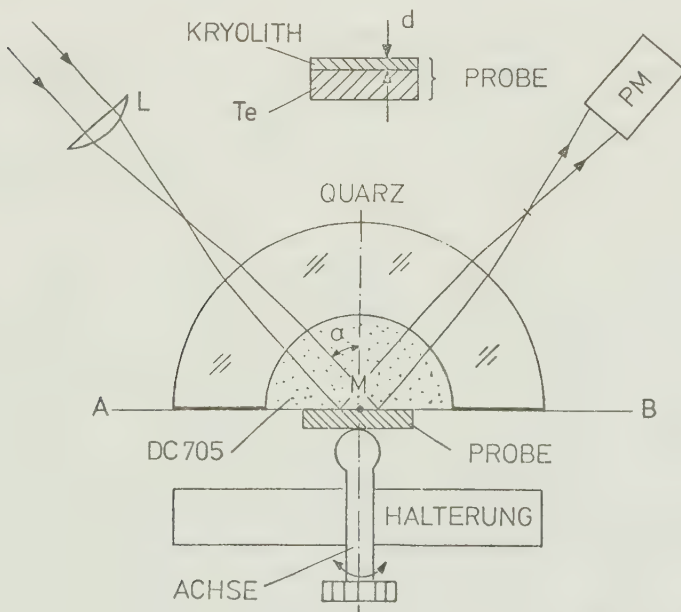


Abb.4.1: "Flüssigkeitsprisma":

Quarzhalbzylinder mit halbzyklindrischer Aussparung,
gefüllt mit Öl (DC 705). L: Zylinderlinse,
PM: Photomultiplier

Zylinderlinse L kompensiert die Brechung durch die Flächen des Quarzglases, so daß ein Parallelbündel unter dem Winkel α auf die Probe trifft. Diese besteht aus dem zu untersuchenden Kristall mit aufgedampfter, niedrigbrechender, dielektrischer Abstandsschicht. Ihre Oberfläche wird senkrecht zur Achse justiert, so daß sich bei Drehung der Probe der Einfallswinkel α nicht ändert. Achse mit Probe können außerdem durch eine Justierung der Achsführung verkippt werden, um eine Autokollimation normal einfallenden Lichtes zu ermöglichen. Die Goniometerachse M muß in der Probenoberfläche liegen.

4.3 Tellur

4.3.1 Motivation der Untersuchung

Es gab mehrere Gründe, über die Anregung von Uller-Zenneck-Wellen die optischen Eigenschaften gerade von Tellur zu studieren. Zum einen liegt sein Fundamentalabsorptionsbereich energetisch niedriger, als der der meisten anderen bekannten Halbleiter, so daß er experimentell leichter zugänglich ist. Zum anderen sollte hier eine Bestimmung optischer Konstanten nützlich sein, da die zwei jüngsten Untersuchungen recht unterschiedliche Resultate ergaben [50, 51]. Sie wurden beide über eine Kramers-Kronig-Analyse von Reflektivitätsspektren bei nahezu senkrechtem Einfall gewonnen. Die zugrunde liegenden Werte waren im uns interessierenden Bereich bis 3 eV identisch, da die eine Gruppe [51] ihre relativen Reflektivitätsmessungen ($h\nu > 3\text{eV}$) an die Absolutwerte der anderen [50] zwischen 3 und 4 eV angepaßt und die niederenergetischen Ergebnisse von [50] übernommen hat. Die Diskrepanzen zwischen den optischen Konstanten beider Gruppen (s. Abb. 4.4 und 4.5) rühren also nur von den unterschiedlichen Reflektivitäten bei höheren Energien her. Das macht deutlich, wie schwierig eine Fehlerangabe bei Kramers-Kronig-Analysen ist.

4.3.2 Probenpräparation und Justierung

Tellur kristallisiert im trigonalen System; es ist optisch einachsigt [52]. Ein einfaches, aber für das Verständnis vieler physikalischer Eigenschaften nützliches Modell, besteht aus helicoidalen Ketten covalent gebundener Atome; die Ketten werden durch van der Waals-Kräfte zusammengehalten [53, 54]. Sie sind ziemlich dicht hexagonal gepackt. Die natürlichen $(10\bar{1}0)$ - Spaltflächen treten parallel zu ihnen auf. Sie enthalten in Kettenrichtung die kristallographische c-Achse, die gleichzeitig optische Achse ist [52]. Durch Spalten bei 77°K stellten wir $(10\bar{1}0)$ -Flächen her, obwohl das Ätzpolieren als Präparationsmethode schonender ist [48]. Die dabei auftretende Welligkeit ist nach unseren anfänglichen Versuchen jedoch so groß, daß der Einfallswinkel der Strahlung auf die Probe nicht mehr scharf genug definiert ist. Unsere besten Kristalle hatten gut spiegelnde Oberflächen von 10-20 mm². Sie wurden direkt nach dem Spalten in einem Vakuum von $2 \cdot 10^{-6}$ torr mit einer Kryolith-Abstandsschicht (s.Kap. 6.2.3) bedampft. Die Dicke der Schicht wurde mittels Vielstrahlinterferenz nach Tolansky [55] bestimmt.

Das zitierte Modell macht verständlich, daß die Spaltstufen in der Tellur-Oberfläche alle parallel zu den Ketten und damit zur c-Achse ausgerichtet sind. Die Probenoberfläche kann deshalb als optisches Gitter angesehen werden mit einer großen Anzahl verschiedener Gitterkonstanten. Das erlaubt eine sehr genaue Orientierung des Kristalls mit optischen Mitteln: Beleuchtet man seine Oberfläche mit einem Parallelstrahl (Laser), wird Licht unter allen möglichen Winkeln nur in eine einzige Ebene gebeugt, deren Flächennormale die c-Achse ist. Dadurch konnte deren Lage bis auf $\pm 0,5^\circ$ senkrecht oder parallel zur Einfallsebene festgelegt werden. Die Intensität des an den Spaltstufen gebeugten Lichtes wird bei Absolutmessungen der Reflektivität nicht mitgemessen. Dadurch entsteht ein systematischer Fehler, der bei einer Kramers-Kronig-Analyse auch in die optischen Konstanten eingeht. Wir haben deshalb die

Winkelverteilung des Streulichtes unserer besten Probe mit der Appartur von Bodesheim [43] gemessen und konnten so die über den Raumwinkel integrierte Intensität zu 2 % des einfallenden Lichtes abschätzen. Dieser Wert liegt jedoch innerhalb der Fehlergrenzen der Messungen von Tutihasi et al. [50] .

Wir haben drei Proben mit Kryolith-Abstandsschichten von 2730, 4250 und 4950 Å Dicke ausgemessen und durch Anpassung theoretischer Kurven optische Konstanten bestimmt. Im folgenden geben wir nur die Ergebnisse unseres besten Experimentes an (4250 Å Zwischenschichtdicke). Sie haben kleinere Fehlergrenzen (s. Abb. 4.4 - 4.6) als die Resultate, die mit den beiden anderen Proben gewonnen wurden. Die Fehlerbalken überlappen sich.

4.3.3 Anpassung theoretischer Kurven

Tellur ist optisch einachsrig; daher müssen bei jeder Wellenlänge zwei Resonanzkurven aufgenommen werden, um den ganzen ϵ -Tensor zu bestimmen. Die c-Achse liegt dabei in bzw. senkrecht zur Einfallsebene.

Als erstes Beispiel unserer Messungen (Fehlerbalken) zeigt Abb. 4.2 das Reflektivitätsverhältnis von p- (oder TH) zu s- (oder TE) polarisiertem Licht einer Wellenlänge von 5900 Å in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α . Im oberen Teil der Abbildung sind die Meßergebnisse für die $x \parallel c$ -Geometrie aufgetragen. Hierbei lag die c-Achse in der Einfallsebene und damit parallel zur Ausbreitungsrichtung x der Oberflächenwellen. Im unteren Teil sind die Resultate für die $x \perp c$ -Geometrie angegeben. Die c-Achse stand senkrecht auf der Einfallsebene und senkrecht zu x . In beiden Fällen lag sie in der Kristalloberfläche. Ein Vergleich der beiden Messungen zeigt deutlich die Anisotropie der optischen Eigenschaften.

Die Anpassung theoretischer Resonanzkurven (durchgezogene Linien) im Reflektivitätsverhältnis von p- zu s-polarisiertem Licht an die experimentellen Werte wird demonstriert: Oben und

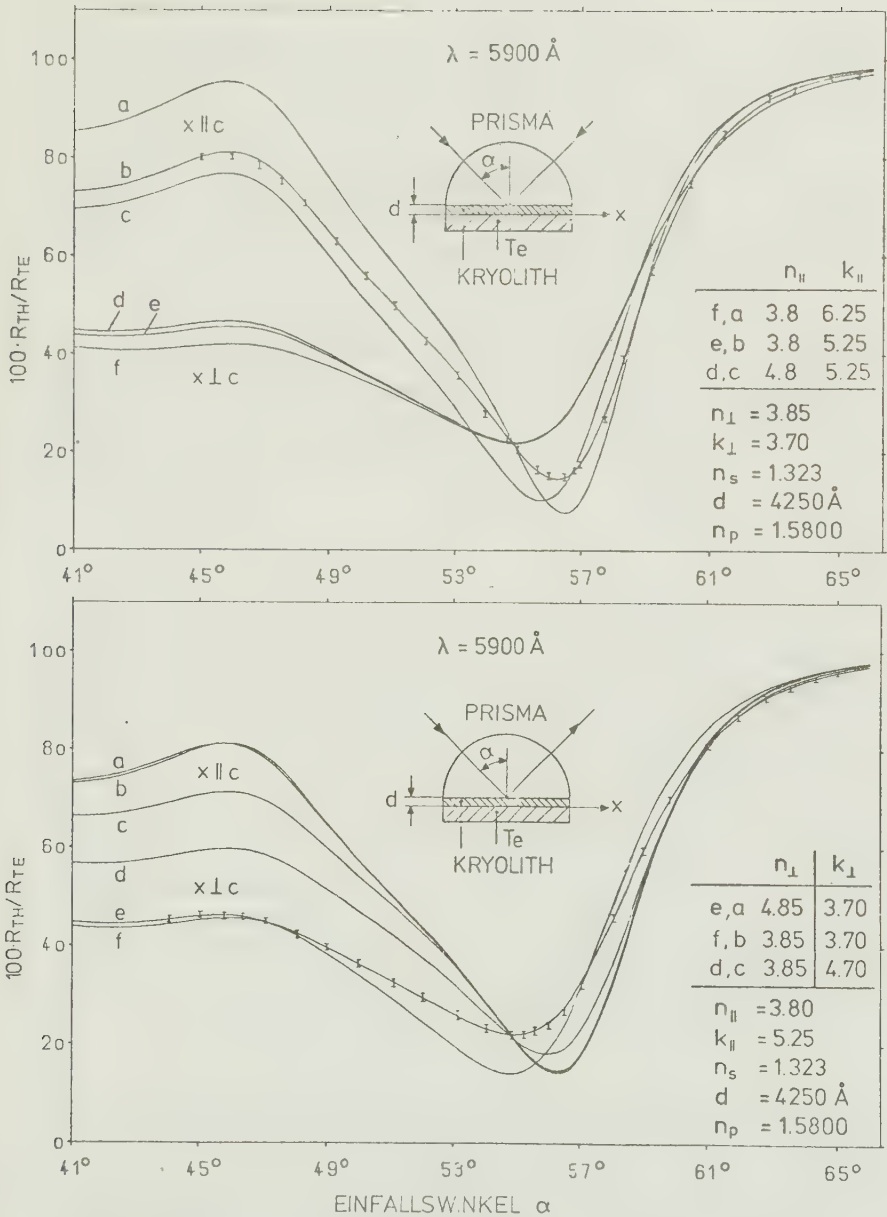


Abb.4.2: Anpassung theoretischer ATR-Kurven (ausgezogene Linien) an die experimentellen Werte (Fehlerbalken). Erläuterungen im Text.

unten sind jeweils drei mit den angegebenen Parametern berechnete Kurven (Gleichung (2.21)) für beide Geometrien ($x_{||}c$ und $x_{\perp}c$) aufgetragen. Oben wurden nur die optischen Konstanten $n_{||}$ und $k_{||}$ variiert, während alle anderen Parameter konstant blieben. Diese Variation verändert fast ausschließlich die Resonanzkurven für die $x_{||}c$ -Geometrie, obwohl alle vier optischen Konstanten bei beiden Geometrien in die Berechnung eingehen. Unten ist es umgekehrt: hier wurden nur $n_{\perp}$ und $k_{\perp}$ und dadurch hauptsächlich die $x_{\perp}c$ -Kurven variiert. Diese "Entkopplung" erlaubt es, den gemessenen Reflexivitätsverhältnissen eindeutig theoretische Kurven anzupassen und dadurch optische Konstanten zu bestimmen. Wie gut das bei unseren Experimenten möglich war, zeigen die optimal angepaßten Kurven b und f der Abb. 4.2, die nahezu alle Fehlerbalken schneiden.

Ein weiterer Parameter dieser Rechnungen ist der Brechungsindex n_g der Kryolithschicht. Er beeinflusst stark nur die Winkellage und nicht die Form der Resonanzkurven. Dadurch läßt er sich sehr genau ermitteln (s. Abb. 6.1) Für beide Geometrien muß n_g natürlich identisch sein; dies ist ein wichtiger Test für die Güte des Experimentes.

Die Genauigkeit der Bestimmung der optischen Konstanten läßt sich aus Abb. 4.2 abschätzen. Sie ist wellenlängenabhängig, was von der unterschiedlichen Stärke der Resonanz herrührt. Bei der quantitativen Berechnung der Fehlerbalken, die in Abb. 4.4 - 4.6 angegeben sind, muß die Unsicherheit in der Zwischenschichtdicke von $\pm 20 \text{ \AA}$ noch berücksichtigt werden. Die Berechnung verläuft genau so, wie in [33] gezeigt.

4.3.4 Meßergebnisse und Vergleich mit Literaturwerten

Weitere Beispiele optimaler Anpassungen analog der Abb. 4.2 sind in Abb. 4.3 dargestellt. Die Kurven a) bis f) entsprechen den Messungen bei 5100, 5700, 6300, 7000, 7600 und 8300 $\text{\AA}$ Wellenlänge. Die Übereinstimmung mit den Meßpunkten,

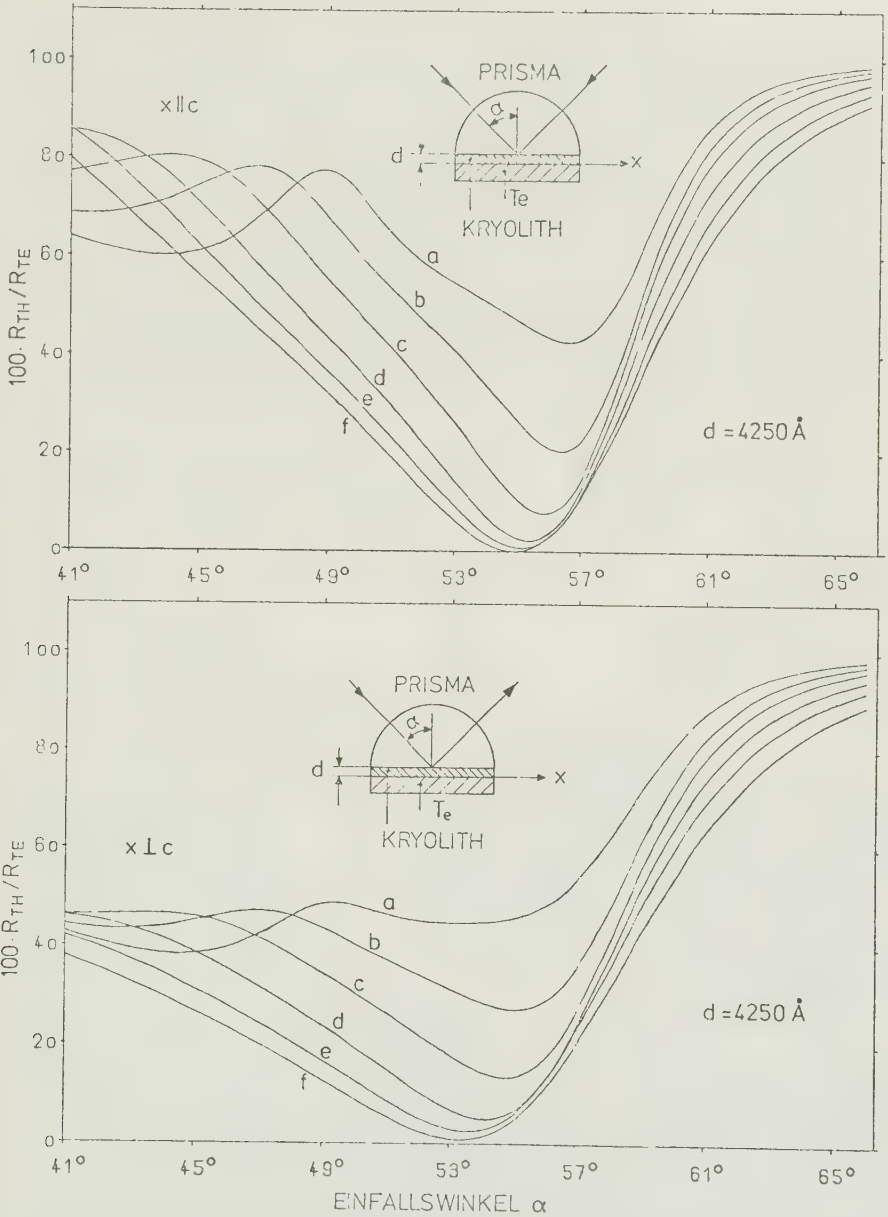


Abb. 4.3: Experimentellen Werten optimal angepaßte ATR-Kurven.
 a) bis f) entsprechen den Wellenlängen 5100, 5700,
 6300, 7000, 7600, 8300 $\text{\AA}$.

die hier aus Gründen der Übersichtlichkeit weggelassen wurden, ist so gut wie in Abb. 4.2 . Oben sind die Spektren für die $x \parallel c$ -, unten für die $x \perp c$ -Geometrie aufgetragen. Die starke Anisotropie macht sich auch in einer unterschiedlichen Winkellage der Resonanz für $x \parallel$ und $x \perp c$ bemerkbar, aus der wir gemäß Gleichung (2.7) die q-Vektoren der Oberflächenwellen berechnen (s.Kap. 4.2.6) .

Die durch die Anpassung bestimmten optischen Konstanten des Tellurs und der Brechungsindex der Kryolithschicht sind in Abb. 4.4, bzw. in Abb. 6.4 , Kap. 6.2.5 , aufgetragen gegen die Photonenenergie im Bereich der Fundamentalabsorption.

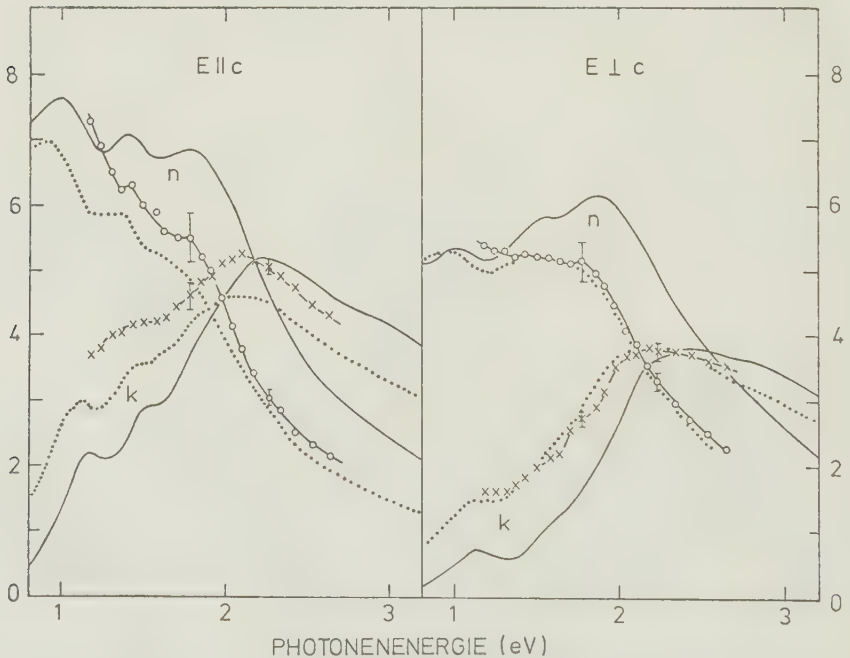


Abb. 4.4: Optische Konstanten n und k von Tellur für $E \parallel c$ und $E \perp c$. Kreise: n , Kreuze: k (diese Arbeit). Ausgezogene Linien: Tutihasi et al. [50] . Punktierte Linien: Bammes et al. [51] .

Unsere Ergebnisse werden in Abb. 4.4 verglichen mit den Werten von Tutihasi et al. [50] (durchgezogene Linien) und Bammes et al. [51] (punktierte Linien), die beide - wie schon erwähnt - aus Kramers-Kronig-Analysen gewonnen wurden, denen im hier dargestellten Bereich identische Reflektivitäten zugrunde liegen. Die Übereinstimmung unserer Ergebnisse mit den Werten von Bammes et al. [51] ist für $E \perp c$ (elektrischer Vektor senkrecht zur c -Achse) sehr gut. Für $E \parallel c$ stimmt nur die energetische Lage der Strukturen mit dem Ergebnis von [51] überein; die Absolutbeträge unserer optischen Konstanten sind größer.

Gemäß Gleichung (1.2) lassen sich aus den optischen Konstanten sofort Real- und Imaginärteil ϵ_1 und ϵ_2 der dielektrischen Tensorkomponenten ϵ_{11} und ϵ_{12} berechnen. Diese sind in Abb. 4.5

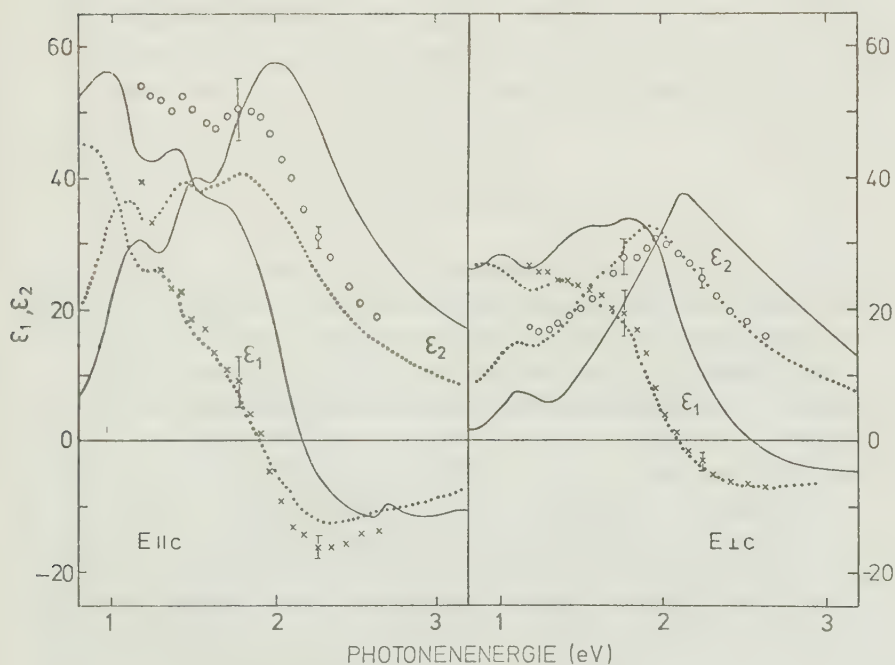


Abb. 4.5: Dielektrische Tensorkomponenten ϵ_{11} und ϵ_{12} von Tellur. Kreise: ϵ_2 , Kreuze: ϵ_1 (diese Arbeit). Ausgezogene Linien: Tutihasi et al. [50]. Punktierte Linien: Bammes et al. [51]

gegen die Photonenenergie aufgetragen, wieder verglichen mit den Ergebnissen der beiden oben angegebenen Gruppen. Auch hier ist natürlich die Übereinstimmung mit den Werten von Bammes et al. [51] bei $E_{\perp c}$ sehr gut (mit Ausnahme einer Schulter bei 1,8 eV), während bei $E_{\parallel c}$ nur ϵ_1 einigermaßen mit dem Resultat von [51] übereinstimmt. Der Hauptunterschied zu den Ergebnissen von Tutihasi et al. [50] besteht in einer Verschiebung unserer ϵ_2 -Kurven zu kleineren Energien bis zu Beträgen von etwa 0,2 eV.

Die sehr sorgfältigen Messungen der absoluten Reflektivität von Tutihasi et al. sind bis auf $\pm 5\%$ genau [50]. An diesem Ergebnis kann man unsere optischen Konstanten durch eine Berechnung der Reflektivität bei normalem Einfall überprüfen. Die optischen Konstanten von [50] und [51] müssen dagegen per definitionem die Tutihasi'schen Reflektivitäten reproduzieren, da sie über eine Kramers-Kronig-Analyse eben dieser Daten gewonnen wurden. Die Reflektivität bei senkrechttem Einfall wird beschrieben durch

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2} \quad (4.1)$$

Die mit Gleichung (4.1) gewonnenen Werte (Kreuze) sind in Abb. 4.6 verglichen mit den Messungen von Tutihasi et al. [50] (durchgezogene Linien) und von Stuke und Keller [56] (strichpunktierte Linien). Im Falle $E_{\perp c}$ ergibt sich, wie nach den vorhergehenden Resultaten auch nicht anders zu erwarten, eine gute Übereinstimmung mit den Messungen von [50]. Bei den niedrigen Energien wird unser Ergebnis ungenauer; das dürfte hier die Abweichung erklären. Anders ist es bei $E_{\parallel c}$: hier liegen unsere Werte - bis auf den ungenaueren niederenergetischen Teil - nahezu konstant um 2 - 3 % über den Meßwerten von Tutihasi. Das ist jedoch innerhalb seiner Fehlergrenzen. In beiden Fällen haben wir also eine gute Bestätigung der Reflektivitätsmessungen von Tutihasi et al. [50], obwohl deren optische Konstanten stark von unseren abweichen. Die älteren Messungen von Stuke und Keller [56] können wir nicht bestätigen; sie liegen bis zu 11 % unter unseren Resultaten.

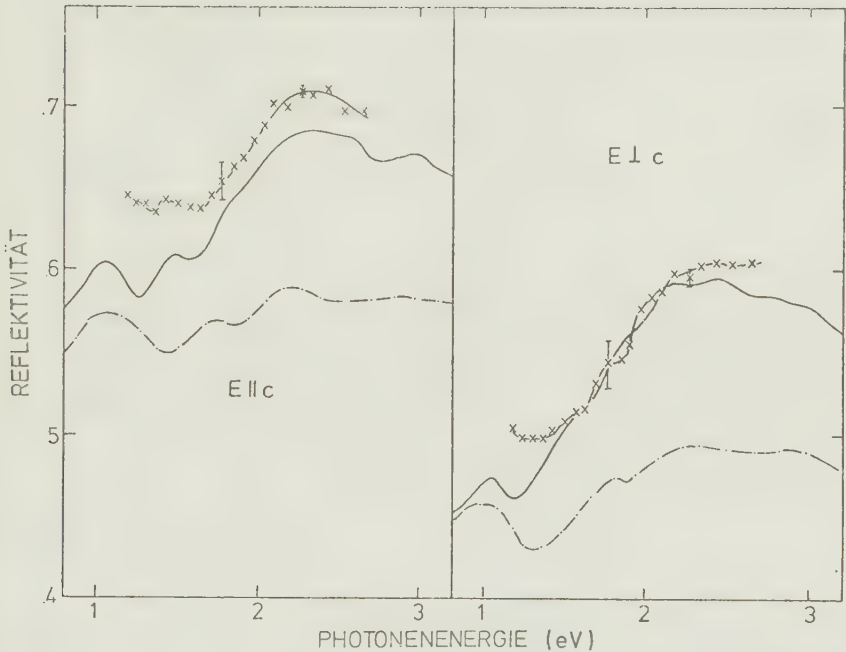


Abb. 4.6: Reflektivität von Tellur bei (nahezu) senkrechtem Lichteinfall für $E \parallel c$ und $E \perp c$. Kreuze: diese Arbeit. Ausgezogene Linien: Tutihasi et al. [50]. Strichpunktuierte Linien: Stuke und Keller [56].

4.3.5 Diskussion der Ergebnisse

Der Fundamentalabsorptionsbereich von Halbleitern wird bestimmt durch Übergänge aus den energetisch höchsten (und damit vollbesetzten) Valenzbändern in die niedrigsten (und leeren) Leitungsbänder. Das bewirkt die hohe Reflektivität und großen Beiträge zum ϵ_2 -Spektrum [1].

Eine Reihe von Bandberechnungen für Tellur [57-60] hat gezeigt, daß hier Übergänge aus einem Valenzbandtripllett in ein Leitungsbändtripllett stattfinden. Maschke [60] hat mit der

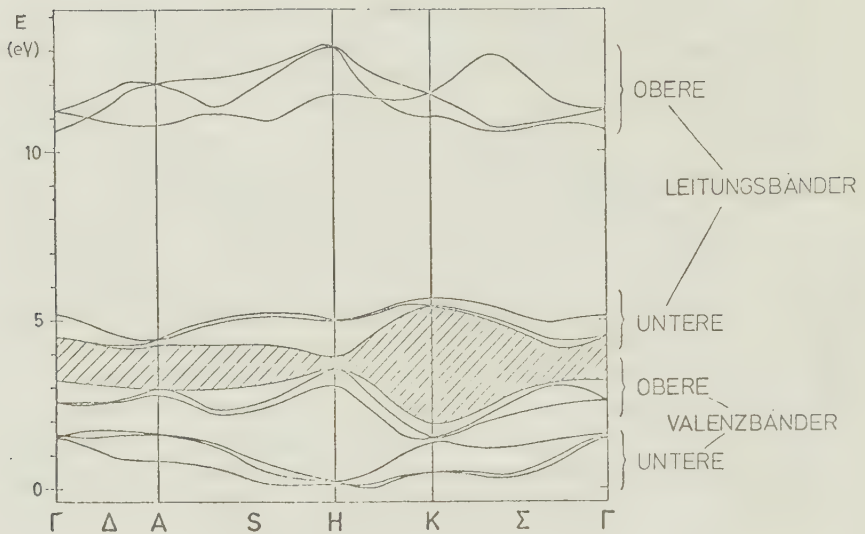


Abb. 4.7: Bandstruktur von Tellur nach Maschke [60] .

Pseudopotentialmethode Bandstruktur (s. Abb. 4.7) und ϵ_2 -Spektrum berechnet. Er konnte zeigen, daß die Valenz- und Leitungsbänder nicht nur in hochsymmetrischen Richtungen wie Δ und s des q -Raumes nahezu parallel laufen, sondern auch in weiten Bereichen der Brillouinzone. Das erklärt die große Oszillatorstärke dieser Übergänge, die bis auf die Bandlücke bei H und eine weitere Ausnahme nicht näher im q -Raum lokalisiert werden können [60] .

Das Ergebnis der ϵ_2 -Berechnung von Maschke [60] wird in Abb. 4.8 mit unseren Meßergebnissen verglichen. Die Form der Spektren ist ähnlich. Die unterschiedliche Höhe dürfte keine wesentliche Diskrepanz sein: Zum einen müßte die Theorie mit Tieftemperaturmessungen verglichen werden, zum anderen bewirkt die ϵ_2 -Summenregel [41] , daß die berechneten ϵ_2 -Beträge des Fundamentalabsorptionsbereichs umso größer werden, je kleiner die Übergangsenergien sind. Schwerwiegender scheint



Abb. 4.8: ϵ_2 -Histogramme nach Maschke [60] . Kreise:
Experimentelles Ergebnis dieser Arbeit.

die energetische Verschiebung der Strukturen bis zu einem Betrag von 0.55 eV zu sein. Die empirische Pseudopotentialmethode kann nämlich, wenigstens bei den kleinen Energien, eine bessere Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment liefern [61, 62] . Dazu wäre eine sorgfältige Neuanpassung der Formfaktoren, die das Pseudopotential und damit Bandstruktur und ϵ_2 -Spektrum bestimmen, notwendig [63, 64] . Das ist jedoch nach Maschke [60] bei Tellur für die einzelnen Formfaktoren nicht möglich, da die Übergänge im q-Raum delokalisiert sind. Deshalb bewirkt die Variation eines Formfaktors allein gleich eine Änderung des gesamten Spektrums und nicht einer einzelnen Struktur. Man könnte allerdings die Formfaktoren pauschal verändern, um die experimentellen Ergebnisse besser wiederzugeben. Eine Verbreiterung des energetischen Abstandes zwischen den parallelen Bändern (Δ und s-Achse in Abb. 4.7) müßte das Resultat sein mit Beibehaltung der Bandlücke bei H, die mit dem Experiment übereinstimmt [60] .

4.3.6 Dispersion der Oberflächenwellen

Erstmals wurden in unserem Tellurexperiment Oberflächenwellen auf Halbleitern im Bereich der Fundamentalabsorption angeregt und ihre Dispersion auf der Tellur-Kryolith-Grenzfläche ausgemessen. Die experimentellen Werte werden in Abb. 4.9 verglichen mit dem theoretischen Resultat, das Gleichung (2.4) liefert mit den optischen Konstanten (bzw. komplexen Dielektrizitätskonstanten), die durch Anpassung nach Kap. 4.3.3 gewonnen wurden. In Abb. 4.9 wird nicht, wie üblich, der Wellenvektor q , sondern der Abstand Δq der Dispersionskurve von der "Lichtgeraden" $q = n_s \cdot \omega / c$ gegen die Photonenenergie aufgetragen. Das bedeutet eine Vergrößerung des Maßstabs. Bei 1.93 und 2.15 eV schneiden die theoretischen Dispersionskurven für die $x \parallel c$ - bzw. $x \perp c$ - Geometrie

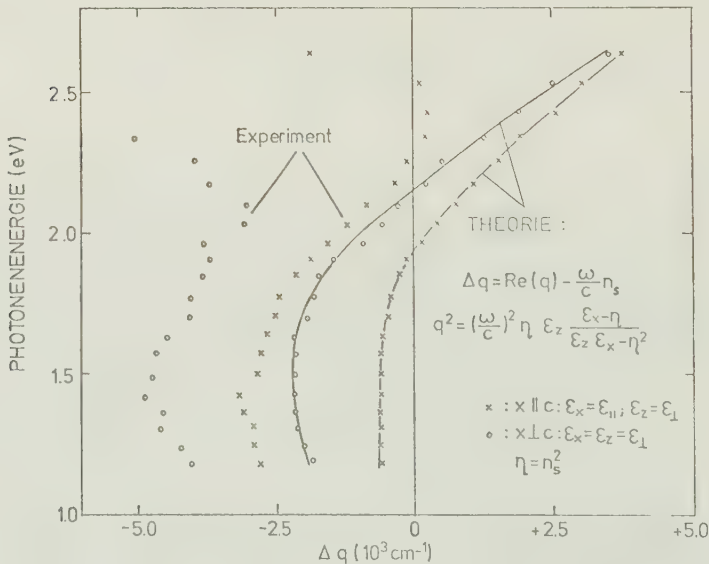


Abb. 4.9: Theoretisch und experimentell bestimmte Dispersionsrelationen von Oberflächenwellen auf Tellur-Kryolith-Grenzflächen

die Lichtgerade. Etwa bei diesen Energien wechselt ε_{111} bzw. ε_{11} das Vorzeichen (s. Abb. 4.5) .

Die experimentellen Werte wurden, wie üblich, aus dem Resonanzwinkel über die Beziehung (2.7) gewonnen. Sie weichen erheblich von den theoretischen ab. Diese Diskrepanz kann man durch den Einfluß des Prismas erklären: Die Resonanzen befinden sich ganz in der Nähe des Grenzwinkels der Totalreflexion; dadurch werden Interferenzen die Resonanzkurve und damit den Resonanzwinkel verschieben. Mathematisch zeigt sich das im Auftreten eines mit der Dicke d der Abstandsschicht oszillierenden Terms in der durch das Prismenmedium und die endliche Zwischenschichtdicke modifizierten Dispersionsrelation [65] .

Die in Abb. 4.9 mit "Experiment" bezeichneten Kurven kann man auch als theoretische Werte ansehen: sie sind gewonnen aus den Minima der optimalen Anpassung an die experimentellen Resonanzkurven. Man sieht, daß die einfache Formel (2.4) für das Dispersionsverhalten der freien Oberflächenwellen dieses Experiment nicht mehr gut beschreibt. Die nächste Näherung wäre die Modifizierung der freien Dispersionsrelation durch Prismenmedium und endliche Zwischenschichtdicke [2, 65] . Die beste, wenn auch komplizierteste Beschreibung des Experimentes geschieht durch die vollständige Reflexionsformel (2.21).

5. Untersuchung von Isolatoren und polaren Halbleitern im Infraroten.

5.1 Einleitung

Mit der ATR-Methode lassen sich in Reststrahlenbanden ($\epsilon_1 < -1$) von Isolatoren und polaren Halbleitern Oberflächenpolaritonen (Fanowellen) anregen [66, 67]. Die Messung ihrer Dispersion ist ein wichtiges Hilfsmittel zur genauen Frequenzbestimmung optischer Phononen geworden [z.B. 17]. Deren Anharmonizität kann mit Oberflächenpolaritonen studiert werden [z.B. 68]. Die Dispersion longitudinaler und transversaler, optischer Phononen und infrarot-aktiver Polaritonen läßt sich mit konventioneller (kein Luftspalt [69]) ATR-Spektroskopie bis zum Wellenvektor $q_{\max} = n_p \omega / c$ verfolgen [17, 40]. Alle polaren Phononen, auch die Raman-inaktiven, können so infrarotspektroskopisch untersucht werden. Dadurch und durch die Erweiterung des spektralen Meßbereiches gegenüber dem Ramaneffekt auf die Frequenzen zwischen ω_{TO} (transversal optisches Phonon) und ω_{LO} (longitudinal optisches Phonon), hat sich die ATR-Methode im Infraroten zu einer idealen Ergänzung der Ramanstreuung entwickelt [17, 70].

Neben Frequenzen und Dispersion der Phononen interessieren auch ihre Dämpfung und Wechselwirkung untereinander. Quantitative Aussagen hierüber sind jedoch nur mit den optischen Konstanten des untersuchten Materials möglich, deren Bestimmung also auch im Infraroten über Anpassungsrechnungen gemäß Kap. 4.3.3 wünschenswert ist [71]. Bisher wurde deren Messung vor allem durch die Schwierigkeit verhindert, einen gleichmäßig breiten Luftspalt bekannter Stärke zwischen Prisma und Probe herzustellen (s. Abb. 2.4). Die zweite Variante der ATR-Methode nach Abb. 2.5 scheidet ja zur Untersuchung von Einkristallen aus. Prinzipiell kann man sich wieder mit dem "Flüssigkeitsprisma" (s. Kap. 4.2) helfen, jedoch nur in Frequenzbereichen, wo transparente Materialien als Zwischenschicht und Prismenöl zur Verfügung stehen. Ein anderer Weg bietet sich jedoch an, die Breite des Luftspaltes genau zu kontrollieren und exakt einzustellen.

5.2 Vielstrahlinterferenz mit Streifen gleicher chromatischer Ordnung zur Messung der Breite des Luftspaltes.

Bei allen uns bekannten ATR-Untersuchungen im Infraroten wird der Luftspalt durch Abstandsfolien bekannter Dicke zwischen Prisma und Probe hergestellt z.B. [17, 68]. Wir konnten jedoch durch Rechnungen zeigen, daß die Breite des Spaltes, wahrscheinlich durch den Einfluß von Staubeilchen, erheblich von der Stärke der Folien abweichen kann [40] (s. auch Abb. 5.3). Ihre Homogenität ist außerdem kaum abzuschätzen. Man muß in Kauf nehmen, daß zur Änderung des Abstands neue Stege zwischen Prisma und Probe eingelegt werden müssen. Ein Spalt variabler Breite, wie ihn Otto [2] und in einer Weiterentwicklung Bodesheim [43] konstruiert haben, wäre vorzuziehen. Die damit verbundenen mechanischen Probleme sind gelöst; es bleibt aber die Schwierigkeit, die Spaltbreite genau zu messen, um sie definiert einstellen zu können.

Wegen der geforderten Genauigkeit kommen nur die optischen Methoden mittels Vielstrahlinterferenz [55] in Frage. Die normale Technik mit (Fizeau-) Streifen gleicher Dicke ist jedoch nicht anwendbar, da sie einen keilförmigen und keinen gleichmäßig breiten Interferenzraum benötigt. Hierzu muß man die etwas kompliziertere Methode mit Streifen gleicher chromatischer Ordnung (auch "FECO" genannt: fringes of equal chromatic order) verwenden (s. Abb. 5.1): Gegenüberliegende Teile von Prismenbasisfläche und Probenoberfläche werden mit Silber- oder Aluminiumschichten bekannter Dicke (Größenordnung: einige hundert Å) verspiegelt, um den Interferenzraum (Breite: einige μ) zu erzeugen. Die Probenverspiegelung ist teildurchlässig. Der Spaltraum wird mit weißem, parallelem Licht beleuchtet. Ein Teil seiner Oberfläche wird in den Eingangsspalt eines Monochromators abgebildet. In dessen Bildebene entsteht ein Spektrum, dem diskrete Interferenzlinien fehlen. Sie erlauben eine eindeutige (keine Ordnungsprobleme!), sehr genaue (bis zu ± 5 Å [72]) Dickenbestimmung. Die Form der Linien spiegelt das Profil des Luftspaltes unter der untersuchten Fläche wieder. Durch Verschieben kann der ganze Interferenzraum abgetastet werden.

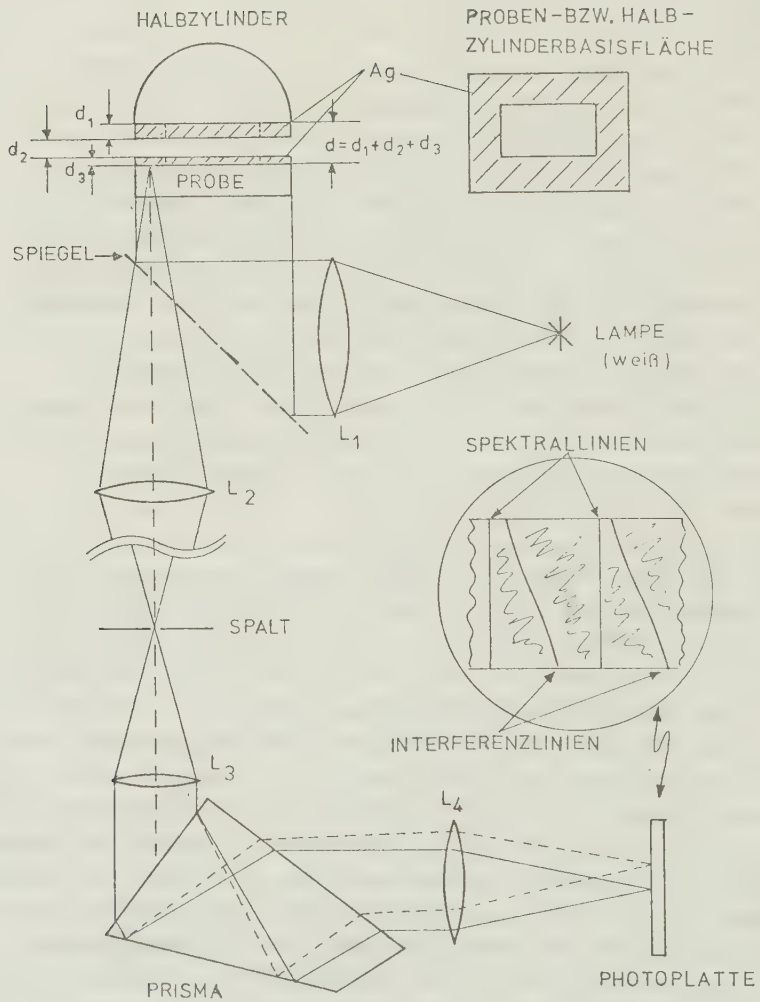


Abb.5.1: Interferometrische Messung der lokalen Breite des Luftspaltes einer ATR-Anordnung mit Streifen gleicher chromatischer Ordnung.

Die hier skizzierte Methode sollte bei transparenten Materialien wie α -Quarz eine definierte Luftspalteinstellung durch Vielstrahlinterferenz im Sichtbaren ermöglichen und dadurch noch genauere ATR-Untersuchungen im Infraroten mit einer Bestimmung optischer Konstanten gestatten. Bei lichtundurchlässigen Materialien muß man allerdings auf eine interferometrische Dickenbestimmung im Infraroten ausweichen, die experimentell wesentlich schwieriger sein dürfte.

5.3 α -Quarz

Durch die Erweiterung der Wolter'schen Formeln (s. Kap. 2.3) war es möglich, ATR-Spektren bei vorgegebenem Frequenzverlauf der Dielektrizitätskonstanten auch für anisotrope Medien zu berechnen. Dadurch konnten wir zur Deutung und Interpretation der Ergebnisse der ATR-Untersuchungen von Falge [17] am optisch einachsigen α -Quarz beitragen. Dies sei an einem Beispiel näher erläutert; ausführlicher werden Experiment und Theorie in [40] dargestellt.

Im Frequenzbereich zwischen 490 und 570 cm^{-1} wird das Reststrahlenband eines parallel zur c-Achse polarisierten optischen Phonons zwischen der transversalen Frequenz $\omega_{\parallel 2} = 495\text{ cm}^{-1}$ und der longitudinalen Frequenz $\omega_{\parallel 2}^1 = 547,7\text{ cm}^{-1}$ teilweise vom Reststrahlenband eines senkrecht zu c polarisierten Phonons überlappt, das bis zur longitudinalen Frequenz $\omega_{\perp 4}^1 = 509,8\text{ cm}^{-1}$ reicht (s. Abb. 5.2).

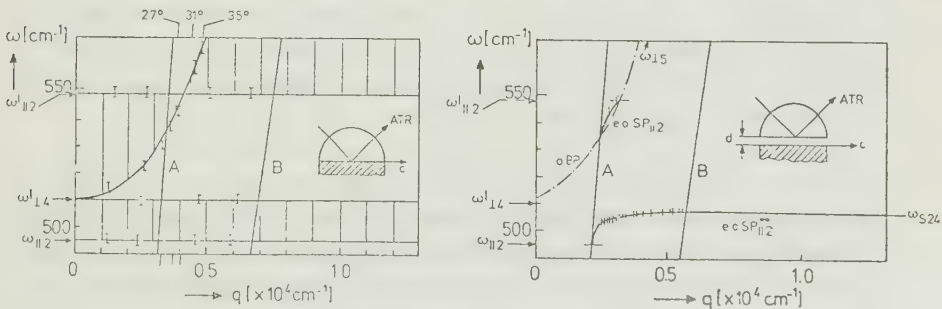


Abb. 5.2: Aus Falge, Otto [18] und Falge, Otto, Sohler [40]. Dispersion von Phononen und Volumenpolaritonen (links), sowie Oberflächenpolaritonen (rechts) mit $q||c$ von α -Quarz. Weitere Erläuterungen im Text.

Dadurch spaltet die Dispersionskurve des außerordentlichen Oberflächenpolaritons (die c-Achse der Probe liegt in der Oberfläche und in der Einfallsebene) in zwei Zweige auf (Abb. 5.2, rechter Teil):

Der energetisch niedrigere Zweig (mit e.o. $SP_{||2}^{\infty}$ bezeichnet [18]) geht asymptotisch gegen die Frequenz ω_{s24} , die durch die Bedingung $\epsilon_{||}(\omega_s) \cdot \epsilon_{\perp}(\omega_s) = 1$ festgelegt wird [18]. Er beschreibt die Dispersion eines Oberflächenpolaritons in einem Bereich, in dem sowohl $\epsilon_{||}$ als auch $\epsilon_{\perp}$ negativ sind. Zwischen ω_{L4}^1 und der Frequenz, wo das ordentliche Volumenpolariton (o. BP) die Lichtgerade A ($\omega = c \cdot q$) schneidet, ist $\epsilon_{\perp}$ positiv, aber kleiner als 1. Dadurch wird ein "Stoppband" definiert, in dem sich Oberflächenpolaritonen nicht ausbreiten können [18]. Dies wird erst wieder möglich, wenn $\epsilon_{\perp} > 1$ und $\epsilon_{||}$ noch negativ ist. In diesem Bereich endet die Dispersionskurve bei einem definierten Stoppunkt der Frequenz $\omega_{||2}^1$ (genauer: bei der Frequenz des Schnittpunktes der Dispersionskurven von ordentlichem Volumenpolariton (o. BP) mit der des außerordentlichen longitudinalen Phonons, die in diesem Wellenvektorbereich horizontal verläuft (s. auch Abb. 5.2, linker Teil)). Diesem Zweig ist kein Oberflächenphonon zugeordnet, dessen Frequenz für $q \rightarrow \infty$ asymptotisch erreicht wird. Aus diesem Grund wird es nach [73] auch als "virtuell angeregt" bezeichnet, im Gegensatz zum "reell angeregten", niederenergetischeren Oberflächenpolariton. Beide Zweige konnte Falge mit einer ATR-Anordnung beobachten [17, 18]. Die Meßpunkte liegen auf der theoretischen Dispersionskurve (Gleichung (2.4)). Sie wurde mit der komplexen Dielektrizitätskonstanten berechnet, die die erweiterte Kurosawa-Formel [74] für den Fall komplexer Frequenzen, d.h. Dämpfung [75], mit den Quarz-Daten von Lamprecht und Merten [75] liefert.

Man kann zeigen [40], daß verallgemeinerte, "p-polarisierte" Reststrahlenbanden entstehen, wenn der Quarz-Kristall in direkten Kontakt mit Prisma bzw. Halbzylinder gebracht wird. Sie liegen zwischen den Dispersionskurven des außerordentlichen longitudinalen Phonons ($\sim \omega_{||2}^1$) und des ordentlichen Volumenpolaritons (o. BP), außerdem zwischen den Dispersionskurven des ordentlichen

longitudinalen Phonons ($\sim \omega_{||4}^1$) und des außerordentlichen transversalen Phonons ($\omega_{||2}$). Sie werden im linken Teil der Abb. 5.2 durch schraffierte Flächen gekennzeichnet. Aus den "Kanten" der Reststrahlenbanden, bzw. den Wendepunkten der $R_p(\omega)$ -Kurven, kann man demnach die Dispersion der entsprechenden Phononen bzw. Polaritonen verfolgen. Das Experiment ist durch den Brechungsindex des Halbzylinders auf den q-Bereich links von B ($\omega = qc/n_p$) beschränkt. Gemessene und mit den erwähnten Eingangsdaten berechnete Spektren sind zur Veranschaulichung der diskutierten Fälle in Abb. 5.3 nebeneinander gestellt. Von links nach rechts nimmt der Einfallswinkel im Halbzylinder und damit der q-Vektor zu. Von oben nach unten wird die Breite d des Luftspaltes vergrößert. Aufgetragen ist die TH (=p-polarisiert) Reflektivität einer ATR-Anordnung gegen die Frequenz bei konstantem Winkel. Als experimentelle Breite ist die Stärke der Abstandsstege zwischen Halbzylinder und Quarzprobe angegeben. In den Rechnungen wurde d solange variiert, bis sich eine optimale Übereinstimmung mit dem Experiment ergab. Dieser Wert, der von der Foliendicke bei den meisten Spektren um einiges abweicht, ist eingetragen.

Die Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie ist im allgemeinen recht gut, natürlich nicht vergleichbar mit derjenigen im Fall angepaßter Spektren wie z.B. in Abb. 4.2. Eine Ausnahme zeigt sich allerdings bei $\alpha = 27^\circ$, $d=6(7)$ und $10(12) \mu$. Hier ist das virtuell angeregte Oberflächenpolariton ($\sim 540 \text{ cm}^{-1}$) im berechneten Spektrum sehr viel deutlicher zu sehen. Der Grund ist unbekannt; ein verfeinertes Experiment nach Abschnitt 5.2 mit Bestimmung optischer Konstanten könnte hier Klarheit bringen.

Das reell angeregte Oberflächenpolariton ($\sim 500 \text{ cm}^{-1}$) ist als Minimum in der TH-Reflektivität gut bei allen Winkeln zu beobachten, wenn der Abstand d nicht zu groß, aber auch nicht zu klein wird. Im letzteren Fall nämlich wächst zwischen den Frequenzen des außerordentlichen transversalen ($\omega_{||2}$) und des ordentlichen longitudinalen ($\omega_{||4}^1$) Phonons ein Reststrahlenband heraus. In Übereinstimmung mit Abb. 5.2 (linker Teil) verändert es sich kaum mit dem Einfallswinkel.

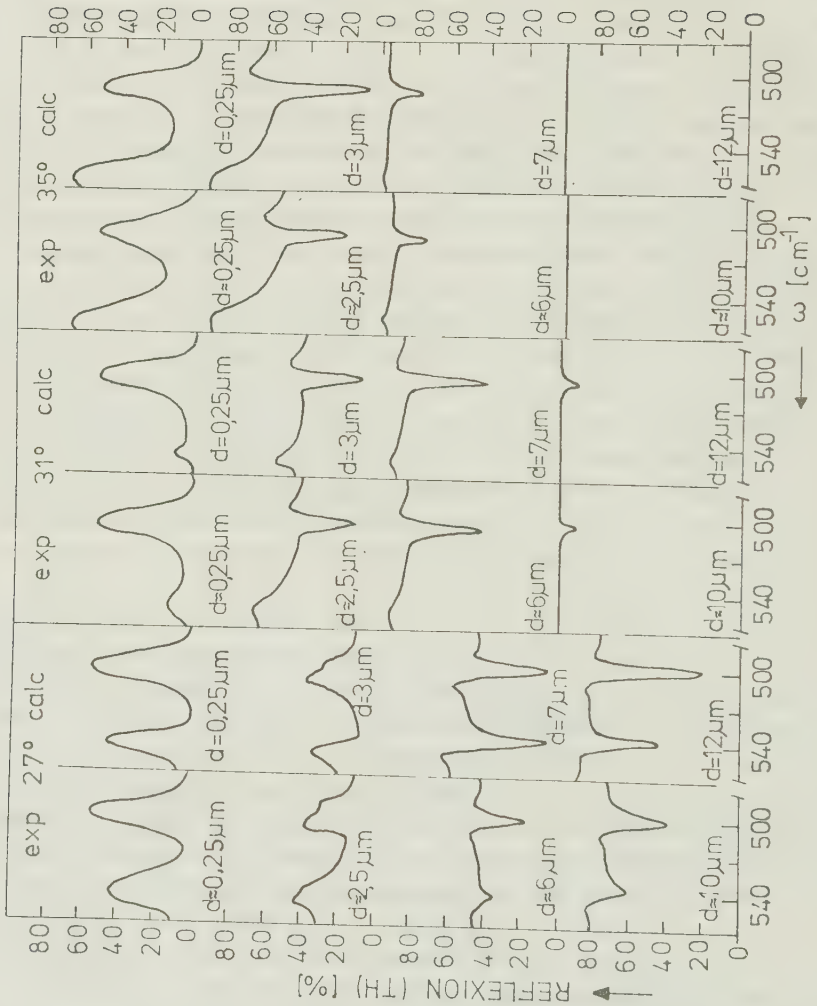


Abb. 5.3: Aus Falge, Otto, Sohler [40] .

Experimentelle und theoretische ATR-Spektren von α -Quarz für zunehmende Breite d des Luftspaltes und wachsende Einfallswinkel α . Die entsprechenden Wellenvektoren q sind in Abb. 5.2 markiert.

Das virtuell angeregte Oberflächenpolariton ($\sim 540 \text{ cm}^{-1}$) ist nur bei $\alpha = 27^\circ$ zu beobachten; bei $\alpha = 31^\circ$ ist bereits der Stoppunkt erreicht. Verringert man wieder die Breite des Luftspaltes, wächst zwischen den Frequenzen des ordentlichen Volumenpolaritons (o.BP) und des außerordentlichen longitudinalen Phonons (ω_{112}^1) bei $\alpha = 27^\circ$ ein Reststrahlenband heraus. Bei $\alpha = 31^\circ$ und $d = 0,25 \mu$ verschwindet es fast in Einklang mit Abb. 5.2 (linker Teil). Erst bei größeren Winkeln ($\alpha = 35^\circ$) taucht es wieder auf.

Ist der Luftspalt zwischen Halbzylinder und Probe zu breit, können keine Oberflächenpolaritonen mehr angeregt werden; man beobachtet nur noch Totalreflexion (Abb. 5.3: $\alpha = 35^\circ$, $d = 10(12) \mu$). Sie tritt nicht bei allen Winkeln auf, da die Reichweite des exponentiell abklingenden Feldes unter der Halbzylinderbasis vom Einfallswinkel (bzw. q-Vektor) abhängt.

6. Untersuchung von Metallen

6.1 Einleitung

Die freie Weglänge der Elektronen in Metallen ist bei Zimmertemperatur im allgemeinen wesentlich kleiner als die mittlere Kristallitgröße in Aufdampfschichten [76]. Man kann deshalb die optischen Eigenschaften von Metallen mit der Methode der verhinderten Totalreflexion (ATR-Methode) auch an Aufdampfschichten untersuchen und braucht keine einkristallinen Proben. Die einfachste Anordnung besteht aus der in Abb. 2.5 gezeigten Form mit Prisma und Schicht. Das scharfe Minimum in der Reflexivität p-polarisierten Lichtes wurde bereits 1959 von Turbadar [77, 78] gefunden, jedoch erst von Kretschmann [24] und Otto [22] nach Wiederentdeckung dieser Geometrie auf die Anregung von Oberflächenwellen zurückgeführt. Kretschmann [29] benutzte diese Form der ATR-Spektroskopie als erster, um über ein Anpassen berechneter an experimentelle Resonanzkurven optische Konstanten von Silber mit großer Genauigkeit zu gewinnen. Diese Methode besticht durch ihre Einfachheit: nur die zu untersuchende Metallschicht bestimmt neben den genau bekannten Eigenschaften des Prismas durch ihre Dicke und optischen Konstanten die Resonanzkurve. Diese kann jedoch stark durch ein Aufwachsen von Deckschichten beeinflusst werden, da die Oberflächenwellen an der Metall-Luft-Grenzfläche entlang laufen. Hierdurch würden die Meßergebnisse verfälscht, so daß man auf passive Materialien, also praktisch auf die Edelmetalle, beschränkt ist. Drei Auswege zur Untersuchung reaktiver Substanzen bieten sich an: Einmal kann man neben der Probenherstellung auch die Reflexivitätsmessungen im gleichen Ultrahochvakuum durchführen. Dieser Weg wurde von Bösenberg [30, 31] eingeschlagen zur Bestimmung optischer Konstanten von Lithium und Natrium. Um hierbei die Genauigkeit von Labormessungen zu erreichen, bedarf es eines großen Aufwandes. Zum zweiten ist es möglich, noch im Ultrahochvakuum eine dielektrische Schutzschicht auf das Metall aufzubringen. Diese Möglichkeit wurde von uns näher untersucht (s. Kap. 7.1). Die Einfachheit der Methode geht jedoch verloren, da Dicke und Brechungs-

index der Schutzschicht die Resonanzkurven mitbestimmen. Zum dritten läßt sich die ATR-Anordnung nach Abb. 2.4 verwenden: eine dielektrische, niedrigbrechende Abstandsschicht wird auf das Prisma aufgedampft und ersetzt so den Luftspalt; ohne das Vakuum zu brechen wird anschließend das Metall aufgebracht. Da so die kritische Grenzfläche zwischen Dielektrikum und Metall geschützt ist, kann man die Probe aus dem Vakuum herausnehmen und im Labor vermessen. Diese Form der Anregung von Oberflächenwellen haben wir zuerst zur Bestimmung optischer Konstanten von Aluminium ausgenützt [33, 79] und in dieser Arbeit weiterentwickelt. An Gold erprobte Barker [32] diese Methode; er variierte jedoch die Wellenlänge bei konstantem Einfallswinkel und paßte an die so gewonnenen Spektren theoretische Kurven an. Hierbei verliert man allerdings an Genauigkeit.

Die Anpassung berechneter Resonanzkurven an experimentelle ist nicht schwieriger als bei der Anordnung nach Abb. 2.5. Es müssen ebenfalls nur drei Parameter bestimmt werden. Diesmal sind es der Brechungsindex der Abstandsschicht und die beiden optischen Konstanten des Metalls. Die Dicke der Schicht wird davon unabhängig mit Vielstrahlinterferenz [55] gemessen.

So unproblematisch die Verwendung einer dünnen dielektrischen Schicht zu sein scheint, bringt sie doch in unserem Fall eine Reihe von Schwierigkeiten mit sich. Nicht nur Dicke und Brechungsindex haben Einfluß auf die Resonanzkurve; auch die Oberflächenbeschaffenheit der Schicht kann die Ausbreitung der Oberflächenwellen behindern [43, 80] und die Struktur und damit die optischen Eigenschaften des darübergedampften Metalls mitbestimmen (s. Kap. 6.3.5).

6.2 Dielektrische Abstandsschichten

6.2.1 Auswahl der Materialien

Der Brechungsindex der Abstandsschicht zwischen Prisma und Metall muß wesentlich kleiner sein als der des Prismas, um eine Anregung von Oberflächenwellen bei nicht zu großen Winkeln α zu ermöglichen (s. auch Kap. 2.2). Wir verwendeten bei der Untersuchung von Metallen die bis $\sim 3 \mu$ Wellenlänge durchlässigen Gläser IRG-2 und

IRG-3 von Schott. Sie haben einen Brechungsindex von 1.8 - 1.9 (genauere Daten siehe [81]) . Deshalb konnten für den Brechungsindex der Abstandsschicht noch Werte bis etwa 1.5 toleriert werden. Es boten sich Alkali- und Erdalkalifluoridschichten an, die schon in der kommerziellen Optik dünner Schichten zur Reflexverminderung, für Interferenzfilter, dielektrische Spiegel und viele andere Anwendungen weit verbreitet und daher gut untersucht sind. Hauptsächlich werden hierzu LiF - , MgF_2 - und Na_3AlF_6 - (Kryolith-) Schichten verwendet, wobei MgF_2 wegen seiner chemischen Stabilität wohl am häufigsten eingesetzt wird. Für unsere Zwecke schien LiF das ideale Material zu sein: es hat einen kleinen Schichtbrechungsindex von etwa 1.3 [33, 82, 83] , der auch homogen zu sein scheint, da in der Literatur nichts Gegenteiliges wie bei Kryolith berichtet wird. Seine Wasserlöslichkeit reicht aus, um aufgedampfte Schichten leicht von Gläsern und Prismen entfernen zu können [84] , ohne mit aggressiven, heißen Säuren die gut polierten Glasoberflächen anzugreifen, wie es beim Lösen von MgF_2 unumgänglich ist [85] . Die Ergebnisse, die wir jedoch mit LiF -Abstandsschichten erhielten (s.Kap. 6.3.4), veranlaßten uns, auch andere Materialien auszuprobieren. MgF_2 -Schichten brachten keinen wesentlichen Fortschritt, so daß wir statt der polykristallinen Fluoridschichten schließlich amorphes Aufdampfglas (Schott 8329) mit einem Brechungsindex von ~ 1.47 verwendeten. Die damit hergestellten Schichten hatten bessere Oberflächen. Wir mußten allerdings in Kauf nehmen, daß sich eine Glasschicht nicht mehr vom Prisma lösen läßt.

6.2.2 Messung der Oberflächenrauigkeit und des Brechungsindex

Die Oberflächenrauigkeit der Abstandsschichten wurde mit drei Methoden untersucht:

a) Vielstrahlinterferenz mit Streifen gleicher Neigung (Tolansky-Methode [55]) wurde zur Schichtdickenmessung benutzt. Aus der Breite der Interferenzstreifen kann man auf die Oberflächenrauigkeit schließen [55] . Bei keiner der untersuchten Schichten, selbst bei den rauhesten aus LiF , konnte jedoch visuell eine Verbreiterung der Streifen beim Übergang von unbedampfter Glasoberfläche zur Schichtoberfläche festgestellt werden (s.auch das Beispiel in [33]) .

b) Eine genauere Methode wurde von Otto und Bodesheim [43, 86] entwickelt: Man strahlt mit polarisiertem Licht senkrecht auf die raue, mit etwa 800 Å Silber bedampfte Probe und mißt das Streulicht in Abhängigkeit vom Ausfallswinkel und der Polarisationsrichtung (s. Abb. 6.2) Durch Vergleich mit den Ergebnissen der Streutheorie von Kröger und Kretschmann [87] kann man das Rauigkeitsspektrum bis zu Ortsfrequenzen von etwa $1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ und mit geeigneten Extrapolationen die mittlere quadratische Rauigkeit der Oberfläche bestimmen.

c) Größere Ortsfrequenzen der Rauigkeit haben dagegen einen Einfluß auf die bei senkrechtem Einfall gemessene Reflektivität von Metalloberflächen in der Nähe der Oberflächenplasmafrequenz [88]. Diese liegt für Silber bei etwa 3350 Å und ist somit experimentell leicht zugänglich. Die Rauigkeit dielektrischer Schichten kann also wieder untersucht werden, wenn man sie mit einer Silberschicht überzieht (s. auch Abb. 6.3), die ihre Oberfläche genau konturiert [89]. Durch Vergleich der gemessenen Reflektivitäten mit berechneten Werten [90-92] erhält man wieder ihre mittlere quadratische Rauigkeit. Die Theorie berücksichtigt die Anregung von Oberflächenwellen über Rauigkeit mit einer gaußförmigen Verteilung und einer Korrelationslänge von 1000 Å.

Der Brechungsindex der dielektrischen Abstandsschichten wurde durch die Anpassung der Winkellage berechneter Resonanzkurven an die experimentellen sehr genau bestimmt [33]. Als Resultat werden in Abb. 6.1 die Brechungsindizes verschiedener Abstandsschichten angegeben, mit denen wir in der ATR-Anordnung nach Abb. 2.4 Aluminium untersucht haben (s. Kap. 6.3).

6.2.3 Lithiumfluorid (LiF)

In der Literatur findet man unterschiedliche Werte für den Brechungsindex von LiF-Aufdampfschichten. Schulz [82] gibt 1.275 an für Wellenlängen im Sichtbaren und Schichtdicken von etwa 2 µ. Shyklyarevskii et al. [83] messen 1.33 bei 7000 Å Wellenlänge und Schichtdicken von 1000-6000 Å. Da der Brechungsindex des Massivmaterials 1.3919 beträgt [93], ermitteln sie eine Packungsdichte

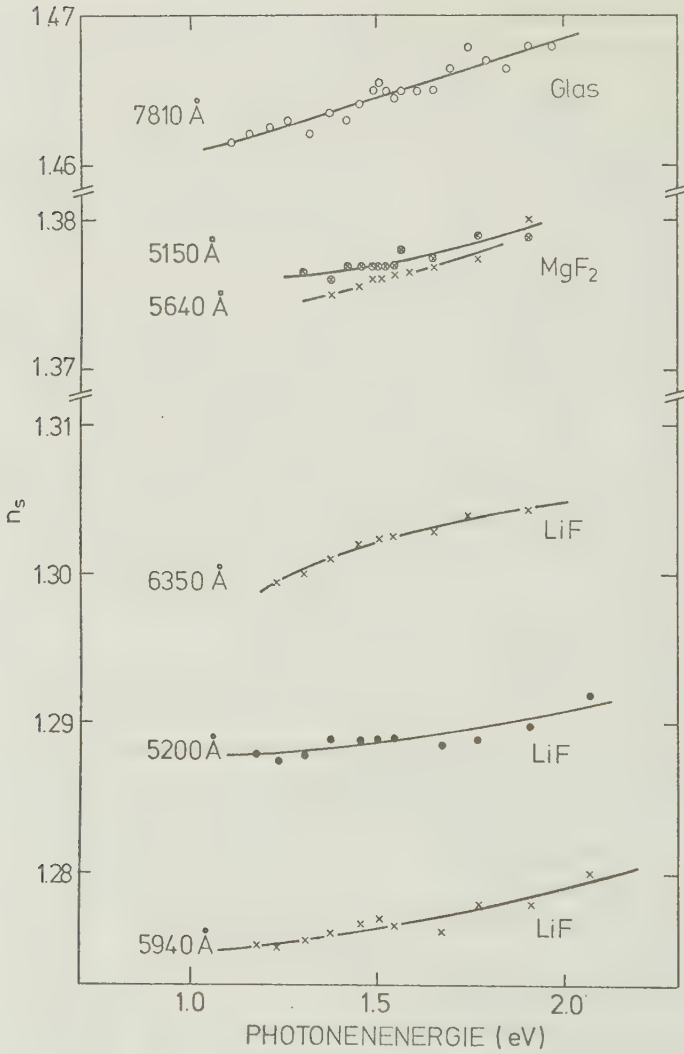


Abb. 6.1: Brechungsindex n_s verschiedener Abstandsschichten unterschiedlicher Dicke.

von 82 %, Schulz von 70 %. Die Aufdampfschichten sind also porös.

Unsere Ergebnisse an drei Schichten differieren merklich untereinander (s. Abb. 6.1). Wir können sie nur durch zufällige (Aufdampfgeschwindigkeit, Frequenz des Drehtellers) und systematische (Position des Drehtellers bezüglich der Quelle) Änderungen der Aufdampfbedingungen erklären. Bei der Herstellung der 6350 Å dicken Schicht befand sich der Drehteller, wie bei allen MgF_2 - und Glas-Schichten, senkrecht etwa 30 cm oberhalb der Aufdampfquelle, während er bei der Aufdampfung der beiden anderen Schichten seitlich versetzt war [33]. Diese Geometrie liefert zwar extrem gleichmäßig dicke Schichten [94], doch ein lockeres Gefüge [95] und dadurch einen kleineren Brechungsindex. Das wird verständlich, wenn auch hier die Kristallite dem Dampfstrahl entgegenwachsen, wie es bei den genauer untersuchten MgF_2 -Schichten der Fall ist [96]. Auf die Schichtdickenhomogenität über Flächen von 30x30 mm konnten wir im Gegensatz zu [33] verzichten, da wir nur mit kleinen Lichtbündelquerschnitten ($\varnothing \sim 3\text{mm}$) arbeiteten.

Uns sind zwei elektronenoptische Untersuchungen von LiF-Aufdampfschichten bekannt [82, 97]. Beide Arbeiten geben eine $\langle 111 \rangle$ -Orientierung von Schichten einer Dicke von mehreren tausend Å an. Das bedeutet, daß die Ecken von Kristalliten des im NaCl-Typ kristallisierenden LiF pyramidenartig aus der Oberfläche herausragen.

Die Oberflächenrauhigkeit unserer im Ultrahochvakuum von Ta- bzw. W-Schiffchen auf ein schnell ($\sim 10\text{ Hz}$) rotierendes Substrat aufgedampften LiF-Schichten wurde mit den in Kap. 6.2.2 angegebenen optischen Methoden bestimmt. In Abb. 6.2 werden die Streulichtintensitäten (nach Verspiegelung mit etwa 800 Å Silber) der glatten und mit 8000 Å LiF bedampften, rauhen Oberfläche angegeben. Aufgetragen ist jeweils die Intensität p-polarisierten Streulichts bezogen auf die Intensität des p-polarisierten, einfallenden Lichtes und die Raumwinkeleinheit in Abhängigkeit vom Ausfallswinkel θ . Aus diesen Messungen erhält man eine mittlere quadratische Rauigkeit $\sigma_{\text{rms}} \sim 3,5\text{ Å}$ für die glatte und $\sigma_{\text{rms}} \sim 11\text{ Å}$ für

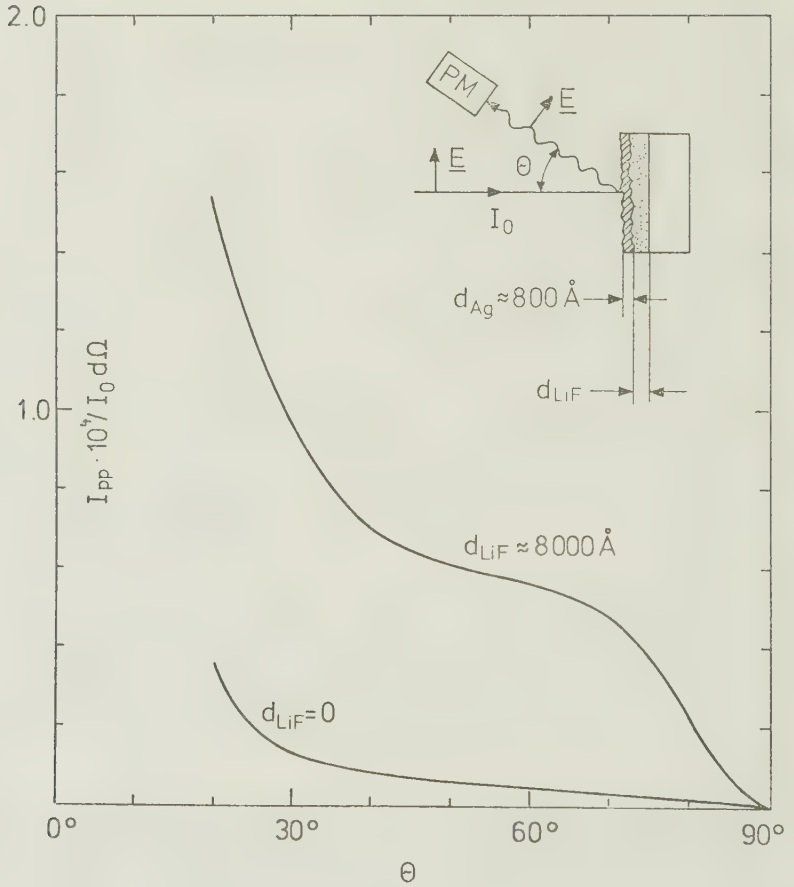


Abb. 6.2: Streulichtintensitäten von der Oberfläche einer 800 Å dicken, glatten und durch Unterschichten von 8000 Å LiF aufgerauten Silberschicht.

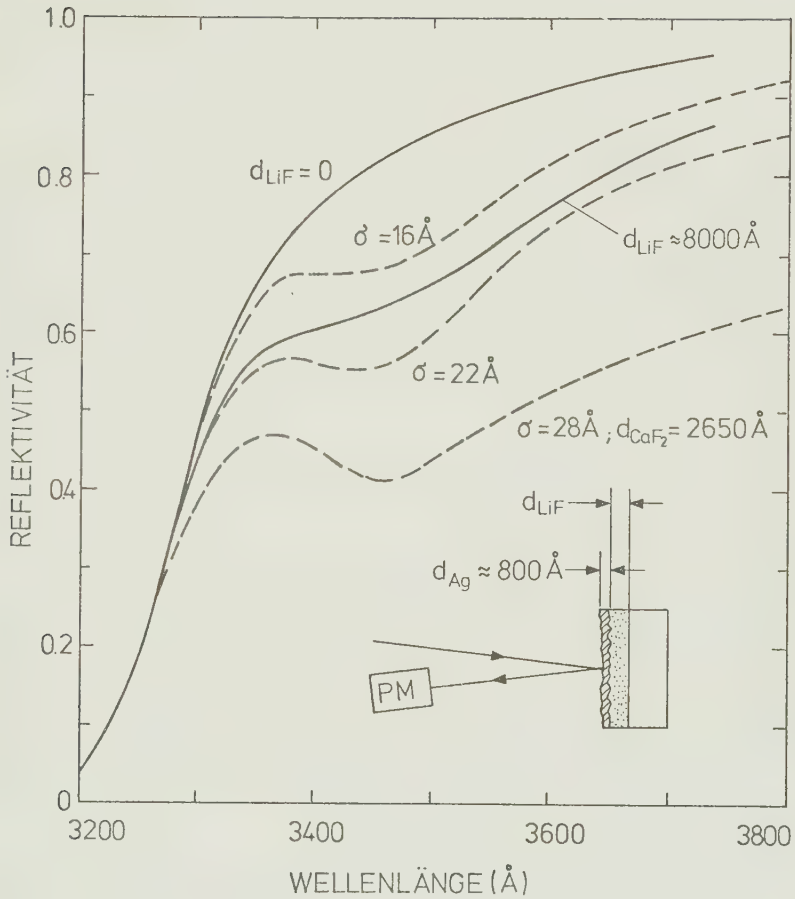


Abb. 6.3: Reflektivität bei nahezu senkrechtem Einfall der Proben der Abb. 6.2 in der Umgebung der Oberflächenplasmafrequenz von Silber (ausgezogene Linien). Messungen von Endriz und Spicer [21] mit Angabe der mittleren quadratischen Rauigkeit σ sind gestrichelt eingetragen.

die raue Probe bei gaußförmigen Extrapolationen zu kleinen und großen Ortsfrequenzen. Das Problem dieser Messungen liegt in der Bestimmung von I_0 , das um etwa 7 Größenordnungen größer als I_{pp} ist. Aus diesem Grund schätzen wir den Fehler der σ_{rms} -Werte auf 50 %.

In Abb. 6.3 wird das Ergebnis der Reflektivitätsmessungen bei nahezu senkrechtem Einfall an denselben Proben in der Nähe der Oberflächenplasmafrequenz von Silber wiedergegeben (ausgezogene Linien). Unsere Resultate werden mit den von Endriz und Spicer [21] gemessenen Reflektivitäten verschieden rauher Oberflächen verglichen (gestrichelte Linien), denen sie eine mittlere quadratische Rauigkeit σ zuschreiben konnten. Die Einordnung unseres Ergebnisses erlaubt die Bestimmung von σ der LiF-Oberfläche zu ungefähr 19 Å. Gleichzeitig kann direkt abgelesen werden, daß unsere 8000 Å dicke LiF-Schicht eine wesentlich glattere Oberfläche hat als z.B. die nur 2650 Å dicke CaF_2 -Schicht (Die Rauigkeit nimmt mit der Schichtdicke zu [91] !). Die wesentlich bessere Qualität unserer LiF-Schichten bestätigt auch der Vergleich der Streulichtintensität mit Messungen von Bodesheim [43, 86]. Die von ihm gemessenen Werte an einer 5100 Å dicken CaF_2 -Schicht lagen um fast zwei Größenordnungen über unserem Ergebnis. Das wird bei der späteren Diskussion unserer optischen Konstanten von Aluminium noch wichtig sein (s.Kap. 6.3.5). Der Reflektivitätsverlauf unserer glatten Probe stimmt sehr gut mit Literaturwerten überein [91]. Eine Bestimmung der mittleren quadratischen Rauigkeit ist hier nicht mehr möglich, da die Empfindlichkeit der Methode für kleine Rauigkeiten abnimmt.

Aus beiden Experimenten (Streulicht und Reflektivität) schließen wir auf ein σ_{rms} unserer LiF-Abstandsschichten von < 20 Å.

6.2.4 Magnesiumfluorid (MgF_2)

Der Brechungsindex von MgF_2 -Aufdampfschichten wurde häufig in den letzten 20 Jahren mit verschiedenen Methoden gemessen [83, 98-109]. In der Literatur findet man Werte von 1.32 - 1.40 für Wellenlängen im Sichtbaren. Ein genaueres Studium erlaubt, die Ergebnisse grob in zwei Klassen einzuteilen: a) 1.32-1.33, b) 1.37-1.40. Es scheint zunächst unverständlich zu sein, wie so unterschiedliche Resultate

trotz hoher Genauigkeitsangaben entstehen können. Die Aufdampfbedingungen spielen dabei nicht die entscheidende Rolle. Ritter et al. [98] konnten nämlich zeigen, daß eine MgF_2 -Schicht im Vakuum direkt nach dem Aufdampfen einen Brechungsindex von ~ 1.32 hat, der nach dem Belüften auf ~ 1.39 ansteigt. Die Autoren schreiben diesen Effekt der Aufnahme von Wasserdampf aus der Atmosphäre zu. Sie bestätigen damit die Deutung von Koch [110], der die spektrale Verschiebung der Durchlaßkurve eines Interferenzfilters vom Fabry-Perot-Typ durch eine H_2O -Sorption (mit reversiblen und irreversiblen Anteil) erklärt hat. Massenspektrometrisch wurde die H_2O -Aufnahme von Pulker und Jung [111] untersucht. Sie ermittelten daraus die Packungsdichte ihrer MgF_2 -Aufdampfschichten zu 73 %. Die Brechungsindizes unserer MgF_2 -Schichten, deren Dispersion in Übereinstimmung mit mehreren Autoren klein ist, betragen im Sichtbaren etwa 1.38 (s. Abb. 6.1). Sie entsprechen damit Schichten, die mit H_2O fast gesättigt sind. Dieses Ergebnis ist erstaunlich, da sie ja zwischen Prisma und Aluminium-Film eingebettet sind. Trotzdem scheint von den Rändern her und durch "Pinholes" der Aluminiumschicht noch genügend Wasser eindringen zu können. Dies ist im Einklang mit der Untersuchung von Koch [110], der die gleiche Beobachtung an seinen Metall-Interferenzfiltern gemacht hat.

An MgF_2 -Aufdampfschichten wurden mehrere elektronenmikroskopische Untersuchungen [96, 97, 112] gemacht. Besonders schöne Aufnahmen haben Pulker und Jung [96] veröffentlicht. Sie beobachteten, daß die Schichten mit einer Säulenstruktur aufwachsen. Der Durchmesser der Säulen beträgt etwa 100 Å bei 1000 Å dicken Schichten. Die Korngrenzen bilden sich während des Aufdampfens parallel zur Dampfstrahlrichtung aus.

6.2.5 Kryolith (Na_3AlF_6)

Der Wert des Brechungsindex von Kryolith-Aufdampfschichten wird in der Literatur zwischen 1.28 und 1.33 für Wellenlängen im Sichtbaren angegeben [83, 113-115]. Je nach Temperatur der Quelle ändert sich nämlich im Dampfstrahl das Verhältnis der beiden Komponenten NaF und AlF_3 , in die Na_3AlF_6 während des Aufheizens dissoziiert [116].

Es ist daher wichtig, mit einer konstanten Temperatur des Aufdampfschiffchens bzw. konstanter Aufdampftrate zu arbeiten, um homogene Schichten herzustellen.

Nur eine elektronenoptische Untersuchung an Kryolithschichten ist uns bekannt [116]. Mit Beugungsaufnahmen wurde ihre chemische Zusammensetzung bestimmt. Pulker und Jung [96] haben mit massenspektrometrischen Untersuchungen gezeigt, daß sie das kompakteste Gefüge aller Fluoridschichten besitzen. Ihre Packungsdichte beträgt 89 %. Das war neben dem niedrigen Brechungsindex der Hauptgrund, weshalb wir Kryolith-Abstandsschichten für die Tellur-Untersuchung im "Flüssigkeitsprisma" (s.Kap. 4.2) verwendet haben. Die hohe Dichte verhindert, daß Prismenöl in die Schicht eindringt und langsam ihren Brechungsindex verändert. Solche Zeiteffekte konnten wir bei LiF deutlich beobachten.

Das Kryolith wurde bei $\sim 1 \cdot 10^{-6}$ torr aus einem Ta-Schiffchen mit hoher, aber gleichmäßiger Aufdampftrate aufgedampft ($\sim 150 \text{ \AA/sec}$). In Abb. 6.4 ist der Brechungsindex einer speziellen Schicht von $4250 \text{ \AA}$ Dicke angegeben. Die Genauigkeit der ATR-Methode erlaubt die Bestimmung der Dispersion.

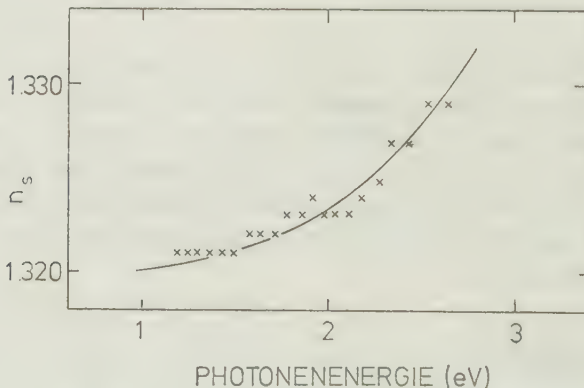


Abb. 6.4: Brechungsindex n_s einer Kryolithschicht von $4250 \text{ \AA}$ Dicke.

6.2.6 Aufdampfglas

In jüngster Zeit wurde von Schott ein spezielles, alkali-haltiges Aufdampfglas [117] entwickelt, das sich nicht wie andere Gläser beim Aufdampfen mit der Elektronenkanone zersetzt. Es wird allerdings Sauerstoff frei [117], so daß der Druck in unserem Rezipienten von $\sim 1 \cdot 10^{-9}$ torr auf $\sim 1 \cdot 10^{-5}$ torr stieg. Die Temperatur der Substrate, auf die die Glasschichten aufgebracht wurden, betrug 150°C .

Die Kontrolle des Aufdampfvorganges mit einem Schwingquarz war bei vernünftigen Aufdampfraten unmöglich. Wir vermuten, daß der Sender durch die auf die Quarzelektrode aufprallenden geladenen Teilchen (Elektronen und Ionen) gestört wurde. Eine Unterbrechung des Aufdampfvorganges zur Beobachtung der Frequenzänderung ist jedoch nicht ratsam, wenn man homogene Schichten erhalten will. Wir umgingen diese Schwierigkeit, indem wir eine Eichkurve zwischen Glasschichtdicke und Aufdampfzeit bei konstanter Leistung der Elektronenkanone von 200 W (4 KV, 50 mA) herstellten. Sie entsprach einer Aufdampfrate von $40 \text{ \AA}/\text{sec}$. Der Brechungsindex von Aufdampfschichten wird im Datenblatt [117] für den sichtbaren Spektralbereich mit ~ 1.470 angegeben. Unsere Resultate - die Dispersion kann wieder verfolgt werden - bestätigen diesen Wert (s. Abb. 6.1). Streulichtmessungen, analog der Abb. 6.2, ergaben eine kleinere mittlere quadratische Rauigkeit als bei LiF-Schichten. Sie wurde jedoch nicht quantitativ bestimmt.

6.3 Aluminium im Bereich des Interbandüberganges bei 1.5 eV

6.3.1 Übersicht über bisherige Experimente

Ehrenreich et al. [118] schrieben 1963 den heute noch weitgehend gültigen Bericht über die "Optischen Eigenschaften von Aluminium". Sie stellten die Ergebnisse der besten, bis dahin existierenden Reflektivitätsmessungen von Bennett et al. [119] im Infraroten und Sichtbaren, von Hass und Waylonis [120] im Ultraviolett und von Madden et al. [124] im Vakuum-Ultraviolett zu einer einzigen von 0-22 eV durchgehenden Kurve zusammen. Über eine Kramers-Kronig-Analyse ermittelten sie die komplexe Dielektrizitätskon-

stante und interpretierten sie mit dem Modell des freien Elektronengases und Interbandübergängen in der Nähe von 1.5 eV. Ihre optischen Konstanten waren größer als die Meßergebnisse von Golovashkin et al. [121] im Bereich von 0,8- 9 μ Wellenlänge, von Schulz [122] und Schulz und Tangherlini [123] im Bereich der Interbandabsorption und größer als die Werte von Hass und Waylonis [120] im Ultraviolett. Der Satz "the optical constants in the present study are higher than all values reported before" sollte auch in Zukunft noch des öfteren die Qualität einer Arbeit dokumentieren. Hier spiegelt sich wieder, daß die Probenpräparation von großem Einfluß auf die optischen Eigenschaften ist. Aluminium ist chemisch sehr reaktiv; selbst in einem Vakuum von 10^{-7} torr wächst sofort eine Oxydschicht auf [124]. Doch nicht nur dadurch, sondern auch durch eine Volumen-oxydation während des Aufdampfprozesses können die Meßergebnisse verfälscht werden [125]. Jede Probe muß deshalb im Ultrahochvakuum präpariert und untersucht werden, wenn ihre Oberfläche nicht vor einer Oxydation geschützt ist.

Auch Oberflächenrauigkeiten können die Reflektivität einer Probe verringern. So konnten Feuerbacher und Steinmann [126] zeigen, daß ein Minimum bei ~ 10 eV nicht durch einen Interbandübergang, sondern durch Anregung von Oberflächenplasmaschwingungen über Rauigkeiten hervorgerufen wird.

Die bis 1969 erschienenen Arbeiten analysierte Powell [127] in einer zusammenfassenden Darstellung. Er paßte berechnete optische Konstanten und Reflektivitäten an die jüngsten experimentellen Daten an. Dazu benutzte er das Drude-Modell (s.Kap. 2.4) und lorentzförmige Oszillatoren mit Dämpfung und Resonanzfrequenz als freien Parametern zur Simulation der Interbandübergänge. Er stellte fest, daß das Verhalten der freien Elektronen in Aluminium nicht mit frequenzunabhängigen Parametern des Drude-Modells (s.Gl.(2.22)) beschrieben werden kann. (Erst mit späteren theoretischen und experimentellen Arbeiten wurde dieser Punkt geklärt.) Außerdem forderte er weitere direkte Messungen von n und k an Proben von mindestens der gleichen Qualität wie sie Bennett et al. [119] (UHV) und Madden et al. [124] (hohe Aufdampfrate) präpariert hatten. Dies war ein Motiv für die vorliegende Arbeit. Auch Shyklyarevskii

und Yarovaya [128] hatten nämlich wie [120-123] optische Konstanten an Proben gewonnen, die mit normaler Aufdampftrate im Hochvakuum hergestellt worden waren.

Lenham und Treherne [129] untersuchten Einkristalle. Auch sie betonten den starken Einfluß der Probenpräparation. Speziell die Oszillatorstärke des Interbandüberganges bei 1.5 eV, also die Höhe des ε_2 -Peaks, blieb umstritten. Bis 1970 wurden nicht nur in experimentellen, sondern ausgeprägter noch in theoretischen Arbeiten unterschiedliche Ergebnisse angegeben. Diese Situation war der eigentliche Anreiz für unsere Arbeit. Obendrein hatten wir durch die ersten Resultate mit der ATR-Methode zur Verwirrung beigetragen [33, 130], da wir trotz größter Sorgfalt bei Probenpräparation und Meßtechnik das mit Abstand kleinste ε_2 -Maximum ermittelten, das je gemessen oder berechnet worden war.

Das Bemühen, die optischen Eigenschaften von Aluminium gerade im interessanten Interbandbereich genau kennenzulernen und zu verstehen, verstärkte sich. Dresselhaus et al. [131] führten weitere Reflektivitätsmessungen mit anschließender Kramers-Kronig-Analyse aus. Sie ergab einen strukturierten ε_2 -Peak bei 1.54 eV mit einer Höhe von 57,5. Hughes et al. [132] sagten einen weiteren Interbandübergang bei $\sim 0,5$ eV voraus, der aber bisher weder von Bennett et al. [119], noch von Biondi und Guobadia [133] mit einer kalorimetrischen Methode (4.2 K) beobachtet worden war. Erst Bos und Lynch [134] konnten ihn durch eine Verfeinerung dieser Methode bestätigen. Dadurch wurde klar, warum das einfache Drude-Modell im nahen Infraroten die optischen Eigenschaften von Aluminium nicht korrekt beschreiben kann.

Die Temperaturabhängigkeit des Interbandüberganges bei 1.5 eV wurde von Liljenvall et al. [135] und Mathewson und Myers [136], [137] untersucht. Sie führten ellipsometrische Messungen im Ultrahochvakuum aus, die uns die zuverlässigsten Daten in diesem Energiebereich zu sein scheinen. Sie interpretieren und diskutieren ihre Ergebnisse mit dem Modell der Parallelbandabsorption von Ashcroft und Sturm [138] (s.Kap. 6.2.2). Die Höhe ihres ε_2 -Peaks beträgt 49.1 in qualitativer Übereinstimmung mit den Rechnungen von Brust [139, 140], Dresselhaus et al. [131] und Ashcroft und Sturm [138], die je nach verwendeter Relaxationszeit Werte von 50-70 erhalten.

Wenn Aluminium auf ein gekühltes Substrat aufgedampft und bei gleicher Temperatur vermessen wird, reduziert sich die Höhe des ε_2 -Peaks, bis er bei 20 K praktisch ganz verschwindet. Dies konnten Bernland et al. [141] zeigen. Hunderi [142, 143] interpretiert diesen Effekt mit Veränderungen der Struktur. Er wurde andeutungsweise auch von O'Shea und Fane [144] beobachtet.

6.3.2 Abriß der Theorie der optischen Eigenschaften

Neben den Alkali-Metallen gilt Aluminium ebenfalls als klassischer Vertreter eines freien Elektronengases. Seine optischen Eigenschaften können weitgehend mit dem Drude-Modell (s.Gl. (2.22)) beschrieben werden; bei genauerem Hinsehen ergeben sich jedoch Schwierigkeiten. Das einfache Bild der freien (aber gedämpften) Elektronen reicht nicht aus, um z.B. quantitativ die komplexe Dielektrizitätskonstante zu berechnen. Die parabelförmige Energieverteilung ($E \sim q^2$) ist gestört; man muß ein schwaches (nicht mehr konstantes) Potential in die Schrödingergleichung einführen, das mit nur wenigen Fourierkoeffizienten nach ebenen Wellen entwickelt werden kann. In der "Weak-Potential-Näherung" [138], mathematisch identisch mit der Pseudopotentialmethode [62], folgt daraus eine den jeweiligen Fourierkomponenten des Potentials proportionale Energieaufspaltung der Elektronenzustände mit q -Vektoren auf den Grenzflächen der Brillouinzonen [138, 145]. In Abb. 6.5 ist das veranschaulicht: Das Energieparaboloid freier Elektronen über einer Schnittfläche im q -Raum z.B. durch M , X und L spaltet über den Zonengrenzen auf; es entstehen parallele Bänder. Sie werden von der Fermienergie geschnitten, da die Fermikugel von Aluminium (auch sie ist an den Zonengrenzen durch den Einfluß des schwachen Potentials etwas deformiert) etwas größer als die 1. Brillouinzone ist. Daher beeinflussen auch nur die Aufspaltungen über ihren zwei nichtäquivalenten Grenzflächen, dem Viereck und dem Sechseck, wesentlich die optischen Eigenschaften. Es reicht aus, das Potential mit nur zwei Fourierkoeffizienten $U_{\underline{q}}$ zu entwickeln, wobei $\underline{q} = (111)$ und $\underline{q} = (200)$ auf der Mitte des Sechsecks bzw. des Vierecks liegen. Die übrigen Fourierkoeffizienten werden durch eine Störungsrechnung höherer Ordnung berücksichtigt [138].

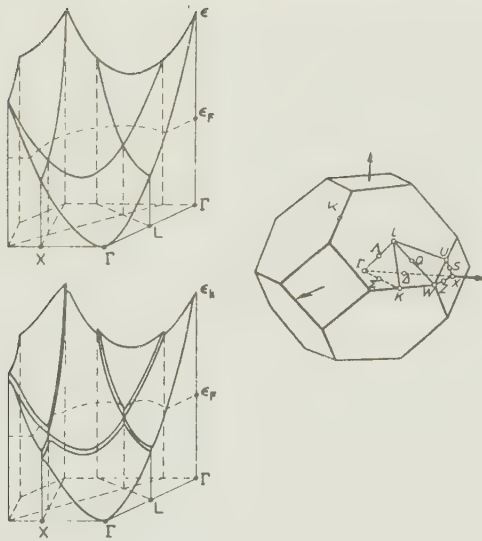


Abb. 6.5: Aus Ashcroft und Sturm [138] und Madelung [1] :
 Energieparaboloid freier Elektronen in Aluminium Über
 der (110)-Ebene im q -Raum (links oben); Aufspaltung der
 entarteten Bänder und Entstehung von Parallelbändern Über
 den Grenzen der Brillouinzone durch ein kleines Kristall-
 potential (links unten); Brillouinzone von Aluminium (rechts);

Die optischen Eigenschaften von Aluminium werden also nicht nur durch das Verhalten der freien Elektronen (Energieparaboloid), sondern auch durch zwei Parallelbandübergänge bestimmt, deren Energie $2 \cdot U_{111}$ bzw. $2 \cdot U_{200}$ ist. Die beiden Fourierkoeffizienten wurden zuerst aus de Haas van Alphen-Daten ermittelt [146]. Mit dem Wert von U_{200} konnte die energetische Lage des Interband-Überganges bei 1.5 eV richtig wiedergegeben werden; außerdem hatte man den ersten Hinweis, daß ein zweiter Interbandübergang bei 0.5 eV existiert. Dessen Oszillatorstärke ist jedoch klein im Vergleich zum höherenergetischen Übergang [134], so daß er erst 1970 bei tiefen Temperaturen in der optischen Absorption beobachtet werden konnte.

6.3.3 Probenpräparation

60°-Prismen aus IRG-2- bzw. IRG-3-Glas (Schott) wurden im Ultrahochvakuum nacheinander mit einer dielektrischen Abstandsschicht (s.Kap. 6.2) und mit etwa 1000 Å reinsten Aluminiums (99, 999 %; Hek GmbH, Lübeck) bedampft, um eine ATR-Anordnung nach Abb. 2.4 herzustellen. Prisma und ein Glasplättchen befanden sich auf einem Teller, der während des Aufbringens der Abstandsschicht mit etwa 10 Hz gedreht wurde, um eine gleichmäßige Dicke zu erzielen (s.auch Kap. 3.1). Sie wurde auf dem separaten Glasplättchen, das während der Aluminium-Bedampfung abgedeckt war, mit der Vielstrahlinterferenzmethode von Tolansky (Streifen gleicher Dicke) [55] gemessen. Die Temperatur der Substrate lag je nach Material und Versuch bei Zimmertemperatur (LiF, MgF₂, Al) oder bei ~ 150°C (MgF₂, Aufdampfglas). Die Fluoride wurden aus W-"Schiffchen" (oder seltener aus Ta-"Schiffchen") mit etwa 100 Å/sec, das Aluminium von einer "Krone" aus W-Draht [33] mit ungefähr 30 Å/sec und das Aufdampfglas von der Elektronenkanone mit etwa 40 Å/sec verdampft. Der Basisdruck lag im Bereich von $5 \cdot 10^{-10}$ torr bis $2 \cdot 10^{-9}$ torr. Während der Herstellung der Abstandsschicht stieg der Druck bei den Fluoriden bis $\sim 1 \cdot 10^{-7}$ torr, beim Aufdampfglas bis $\sim 2 \cdot 10^{-5}$ torr. Erst nach erneutem Erreichen des Basisdruckes wurde die Aluminium-Schicht aufgedampft; der Druck blieb dabei im 10^{-9} torr-Bereich.

6.3.4 Meßergebnisse

Reflexionsspektroskopie ist eine "anschauliche" Methode, um elektronische und vibronische Eigenschaften von Festkörpern zu untersuchen: Eine Struktur im Reflektivitätsverlauf ist ganz eng mit einer entsprechenden Struktur im ϵ_2 -Spektrum korreliert. ATR-Spektroskopie hingegen scheint sehr "unanschaulich" zu sein: Immer wird zunächst die Anpassung berechneter Kurven an experimentelle mit Hilfe aufwendiger Computerrechnungen benötigt, bevor quantitative Aussagen über die optischen Konstanten möglich werden. Qualitative Aussagen jedoch lassen sich bereits aus den gemessenen Resonanzkurven gewinnen. Dazu haben wir einen Teil der Meßergebnisse, die wir mit einer Glas-Abstandsschicht erzielt haben, in Abb. 6.6 als $1-R_{TH}/R_{TE}$ aufgetragen gegen den Einfallswinkel β außen

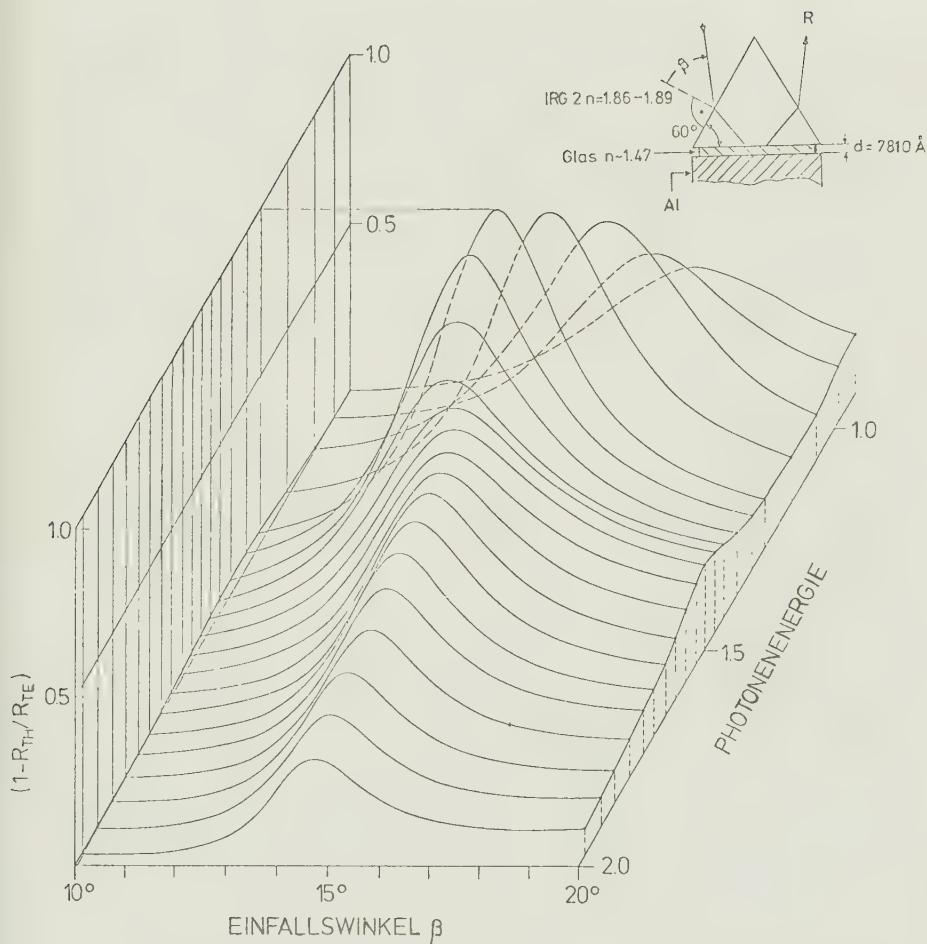


Abb. 6.6: Experimentelle ATR-Kurven einer Aluminium-Probe mit Glas-Abstandsschicht als $(1 - R_{TH}/R_{TE})$ aufgetragen gegen den Einfallswinkel β und die Photonenenergie.

am Prisma und gegen die Photonenenergie. Es entsteht so ein richtiges Gebirge, das auch die ATR-Spektroskopie "anschaulicher" werden läßt; bei 1.5 eV kann man nämlich den Einfluß des Interbandüberganges auf diese Weise deutlich erkennen: Der Resonanzwinkel, also der Winkel maximaler Absorption, der der Lage des Gebirgskammes entspricht, wandert mit kleiner werdender Photonenenergie hin zu größeren Winkeln β . Nur bei 1.5 eV erkennt man ein Umbiegen zu kleineren Winkeln. Der Anstieg zum Hauptgipfel (=100 % Absorption bei 1.26 eV) ist nicht gleichmäßig. Bei 1.5 eV zeigt sich ein Plateau. Hier erscheint auch ein Maximum in der Absorption, wenn bei konstantem Winkel (10° ; 20°) die Photonenenergie variiert wird.

Diese Effekte kann man an verschiedenen Proben genauer auf den Abb. 6.7 - 6.9 studieren. Der Verlauf der Resonanztiefe T ($= \text{Max}(1-R_{\text{TH}}/R_{\text{TE}})$) zeigt bei 1.5 eV eine Schulter, die dem erwähnten Plateau entspricht. T steigt mit abnehmender Photonenenergie bei einem guten Experiment bis auf 1 an und fällt anschließend rasch ab. Mit einer einzigen Probe einer speziellen Dicke der Abstandsschicht kann also immer nur ein begrenzter Spektralbereich untersucht werden.

Die starke Abhängigkeit des Resonanzwinkels vom Material der Abstandsschicht ist von Bedeutung (Abb. 6.8). Sie erlaubt, den Brechungsindex der Schicht sehr genau zu bestimmen (vgl. Abb.6.1). In der Halbwertsbreite HWB der Resonanzkurven ($\text{HWB} = |\beta_1 - \beta_2|$ mit $1-R_{\text{TH}}/R_{\text{TE}}(\beta_1) = 1-R_{\text{TH}}/R_{\text{TE}}(\beta_2) = T/2$) tritt bei 1.5 eV ein Maximum auf. Bei den dickeren Abstandsschichten ist es am deutlichsten zu erkennen (Abb. 6.9).

Die optischen Konstanten n und k erhielten wir als Ergebnis unserer Anpassungsrechnungen (s.auch Kap. 4.3.3 und [33]). Über Gleichung (1.2) folgte damit die komplexe Dielektrizitätskonstante $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$. Die Resultate für ϵ_1 dreier ausgewählter ATR-Proben mit einer LiF, einer MgF_2 - und einer Glas-Abstandsschicht sind in Abb. 6.10 aufgetragen. Sie werden verglichen mit den wohl zuverlässigsten Werten, die nicht über eine Kramers-Kronig-Analyse, sondern direkt durch Ellipsometrie gewonnen wurden [136, 137]. Eine gute Übereinstimmung ergibt sich nur mit den Resultaten, die mit einer Glas-Abstandsschicht gemessen wurden.

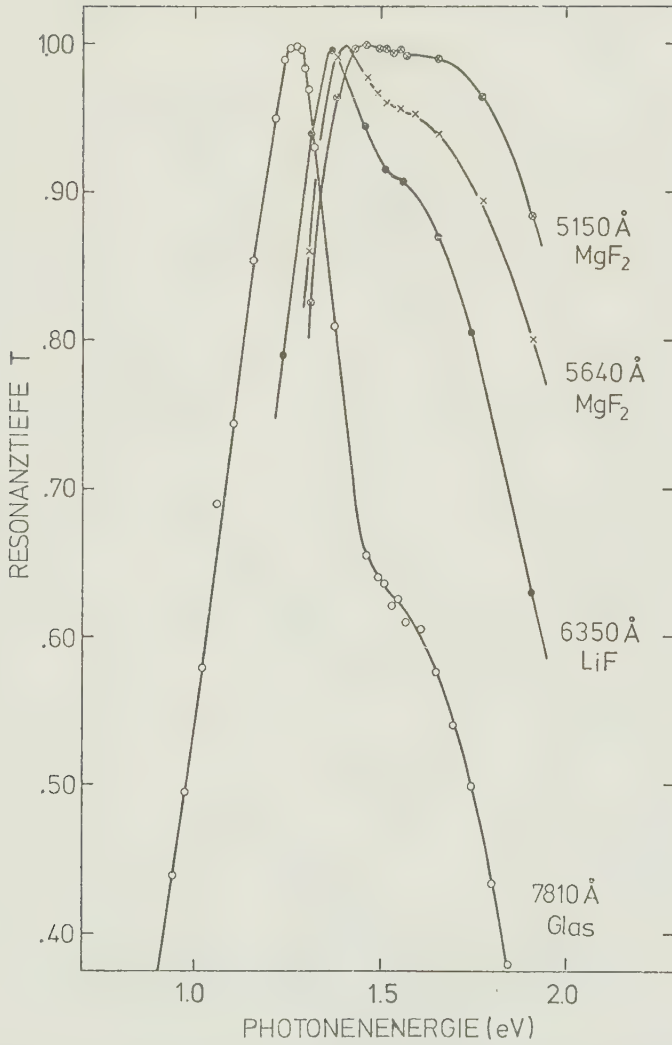


Abb. 6.7: Resonanztiefe T der ATR-Kurven einiger Aluminium-Proben mit verschiedenen Abstandsschichten in Abhängigkeit von der Photonenergie.

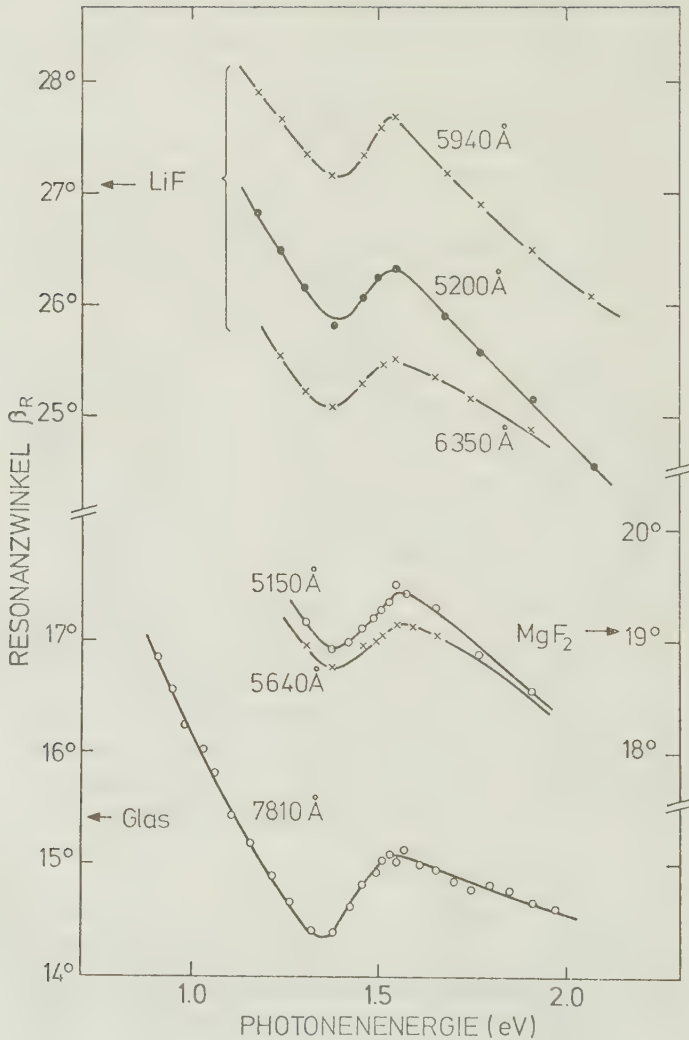


Abb. 6.8: Resonanzwinkel β_R der ATR-Kurven einiger Aluminium-Proben mit verschiedenen Abstandsschichten in Abhängigkeit von der Photonenergie. Man beachte den unterbrochenen Winkelmaßstab.

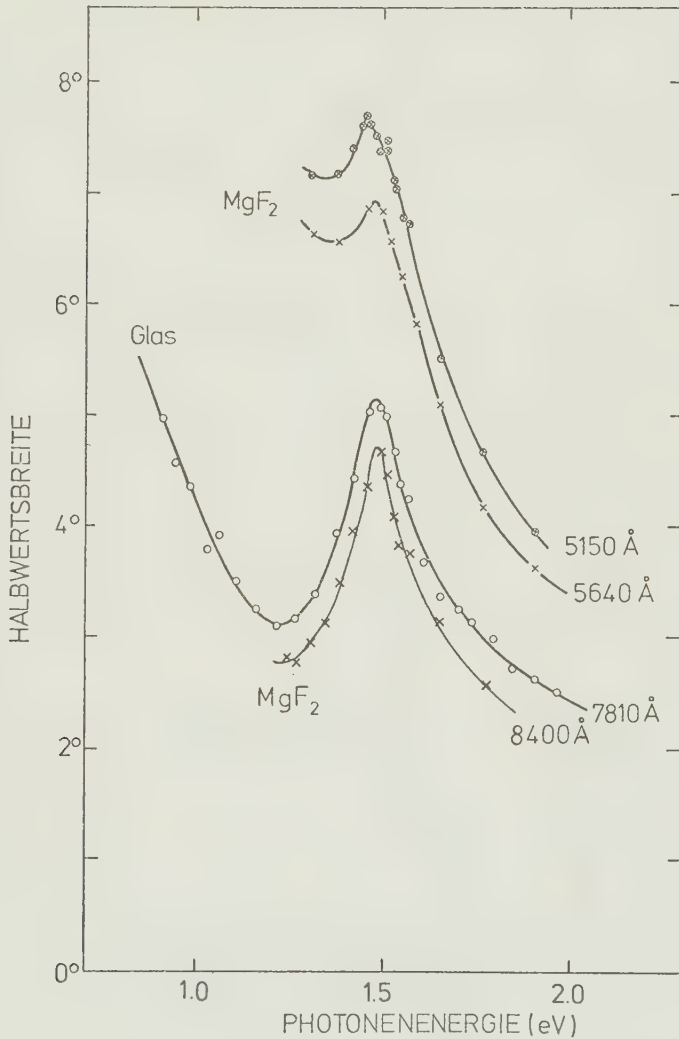


Abb. 6.9: Halbwertsbreite der ATR-Kurven einiger Aluminiumproben mit verschiedenen Abstandsschichten in Abhängigkeit von der Photonenenergie.

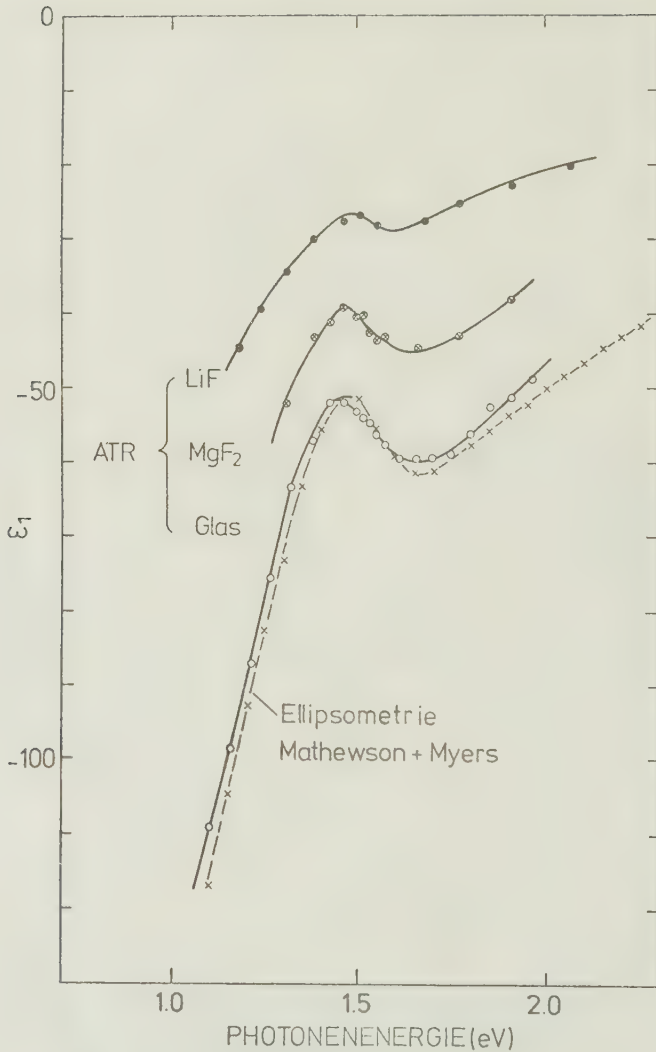


Abb. 6.10: Realteil ϵ_1 der komplexen Dielektrizitätskonstante von Aluminium im Bereich des 1.5 eV-Interbandüberganges. Die Resultate der ATR-Methode mit drei ausgewählten, verschiedenen Abstandsschichten werden mit ellipsometrisch gewonnenen Werten [137] verglichen.

Die Werte der Probe mit LiF sind um etwa einen Faktor zwei kleiner; diejenigen mit MgF_2 liegen dazwischen. Die drastische Abhängigkeit unserer Meßergebnisse vom Material der Abstandsschicht ist vielleicht noch deutlicher in den ϵ_2 -Spektren zu beobachten (s. Abb. 6.11). Hier werden wieder die Resultate derselben drei ATR-Proben mit den ellipsometrischen Werten von Mathewson und Myers [136, 137] verglichen. Der Interbandübergang bewirkt ein ausgeprägtes Maximum bei 1.5 eV über dem mit der Energie steil abfallenden "Drude-Anteil" (s. Gl. (2.22)) der freien Elektronen.

Alle unsere Proben waren ungetempert, während die Resultate von [136, 137] an getemperten Schichten gewonnen wurden. Dadurch wächst der ϵ_2 -Peak von ~ 44 auf ~ 49 und verschiebt sich von 1.52 eV nach 1.56 eV [147] , so daß wir bei ungetemperten Schichten in der Peakhöhe und energetischen Lage eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit dem Ergebnis der Probe mit Glas-Abstandsschicht feststellen können. An den Flanken bleiben allerdings Differenzen bestehen; diese sind jedoch klein, verglichen mit den Unterschieden zu den LiF-Werten, die fast um einen Faktor drei kleiner sind - weit außerhalb der Grenzen jeglicher Fehlerrechnung [33] . Die Ergebnisse mit MgF_2 -Abstandsschichten liegen wieder in der Mitte.

Als Test unserer optischen Konstanten haben wir die Reflektivität von Aluminium bei senkrechtem Einfall mit Gl. (4.1) berechnet. Sie wird in Abb. 6.12 mit den besten Messungen von Bennett et al. [119] und den Werten, die mit den optischen Konstanten von Mathewson und Myers berechnet wurden, verglichen. Der Interbandübergang zeigt sich als Minimum in der Reflektivität. Wir stellen eine ausgezeichnete Übereinstimmung unserer Glas-Daten mit dem Bennett'schen Ergebnis fest, die noch besser ist als zwischen dem ellipsometrisch gewonnenen Resultat und der Meßkurve. Lediglich im Minimum der Kurve erhalten wir eine Reflektivität, die um etwa 1 % kleiner ist als der Meßwert. Erstaunlich ist, daß die optischen Konstanten der Probe mit LiF-Abstandsschicht eine Reflektivität ergeben, die nur um 2-3 % unter dem Meßergebnis liegt. Die Übereinstimmung mit dem Ergebnis der MgF_2 -Probe ist noch besser; es wurde hier aus Gründen der Übersichtlichkeit weggelassen.

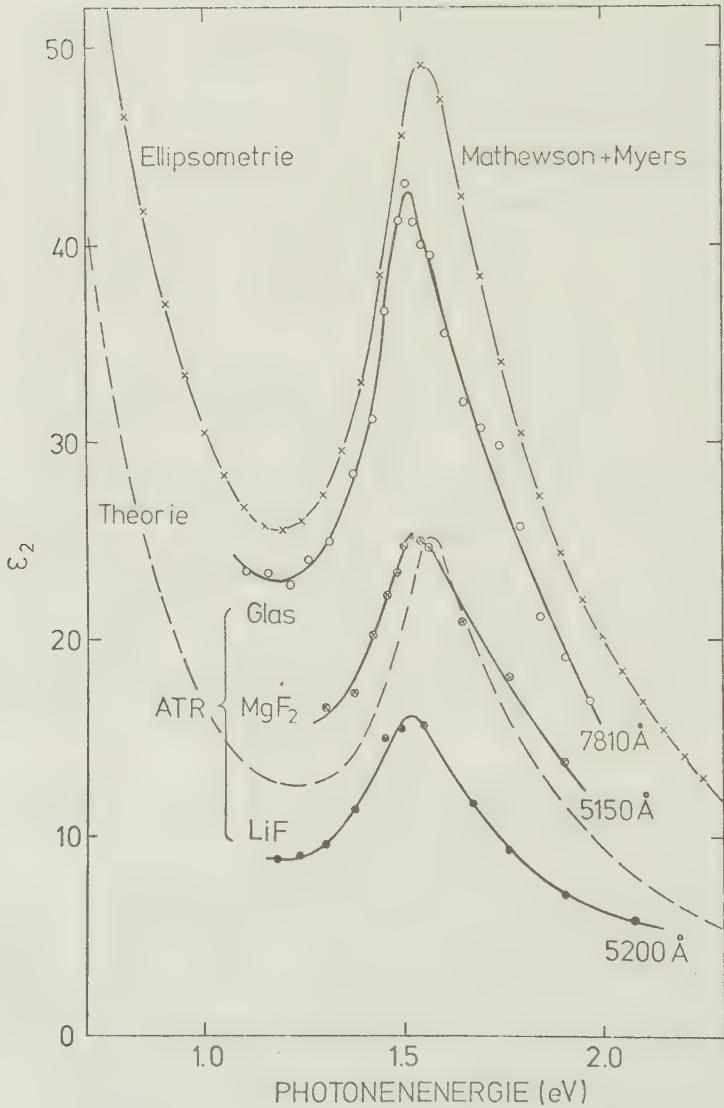


Abb. 6.11: Imaginärteil ϵ_2 der komplexen Dielektrizitätskonstante von Aluminium im Bereich des 1.5 eV-Interbandüberganges. Die Resultate der ATR-Methode mit den gleichen Abstandsschichten wie in Abb. 6.10 werden mit ellipsometrisch gewonnenen Werten [137] verglichen. Theorie des Zwei-Phasen-Modells von Hunderi [142] : gestrichelte Kurve.

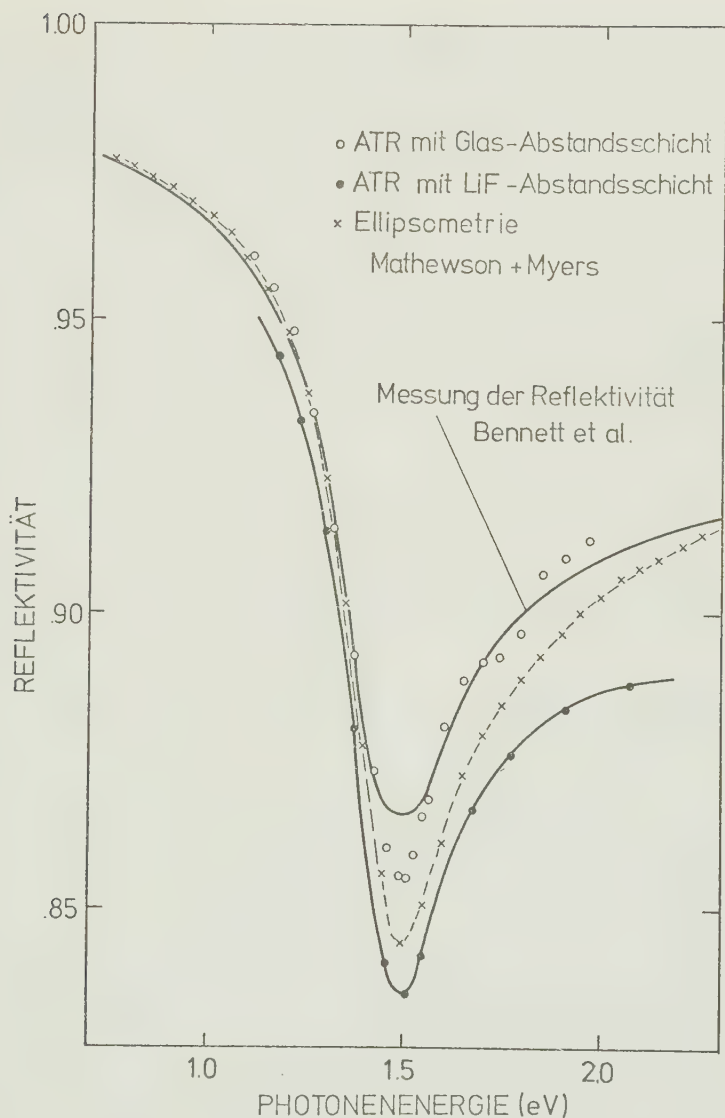


Abb. 6.12: Mit den ATR-Resultaten berechnete Reflektivität von Aluminium bei senkrechtem Einfall in der Umgebung des 1.5 eV-Interbandüberganges. Zum Vergleich: direkte Messung von Bennett et al. [119] und berechnete Reflektivität aus dem Ergebnis von Mathewson und Myers [137].

6.3.5 Diskussion der Ergebnisse

Unsere Messungen haben gezeigt, daß die ATR-Methode mit einer Abstandsschicht aus Glas die besten ellipsometrisch gewonnenen Werte der Dielektrizitätskonstanten und die direkt gemessene Reflektivität von Aluminium befriedigend reproduziert. In dieser Form kann sie in Konkurrenz mit anderen Methoden treten; man hat den Vorteil, die optischen Untersuchungen nicht unbedingt im Vakuum durchführen zu müssen.

Die starke Abhängigkeit unserer Ergebnisse vom Material der Abstandsschicht konnten wir lange nicht erklären (s. [33]). Glas-schichten sind amorph, Fluoridschichten polykristallin. Aus diesem Grund sollten sie prinzipiell eine rauhere Oberfläche haben. Die mittlere quadratische Rauhmigkeit der Oberfläche unserer LiF-Schichten mit Dicken, wie wir sie im ATR-Experiment eingesetzt haben, ist jedoch kleiner als $20 \text{ \AA}$ (s.Kap. 6.2.2). Das ist bei den meisten Anwendungen in der Optik zu vernachlässigen, so daß man mit ideal ebenen Grenzflächen rechnen kann. ATR-Resonanzkurven werden jedoch durch Rauhmigkeiten auf der Metalloberfläche, die durch Abstandsschichten erzeugt werden können, zu größeren Winkeln α verschoben [80, 86]. Das würde die Auswertung und damit die Bestimmung optischer Konstanten verfälschen. In [86] war die mittlere quadratische Rauhmigkeit allerdings wesentlich größer als $20 \text{ \AA}$; sie konnte mit der in Kap. 6.2.2 skizzierten Streulichtmethode nicht mehr bestimmt werden. Wir vermuten, daß sie auch in [80] größer war, da sie durch Unterschichten des Metalls mit CaF_2 , das wesentlich rauhere Oberflächen liefert (s.Kap. 6.2.3), hergestellt wurde.

Den Einfluß der Oberflächenrauhmigkeit unserer LiF-Schichten und damit des untersuchten Aluminiums auf die ATR-Resonanzkurven haben wir in der gleichen Anordnung wie Bodesheim [43, 86] an Al-Luft-Grenzflächen untersucht. Dazu wurden an verschiedenen rauhen Oberflächen, die durch Unterschichten mit LiF erzeugt worden waren, Oberflächenwellen über einen Luftspalt angeregt und die Resonanzwinkel miteinander verglichen. Bei Unterschichtung mit $3000 \text{ \AA}$ LiF war die Resonanz praktisch nicht ($< 5^\circ$) gegenüber einer glatten Probe verschoben. Die leicht rauhe ($\sigma_{\text{rms}} < 20 \text{ \AA}$) Al-Grenzfläche gegen Luft zeigt also im Rahmen unserer Meßgenauigkeit das gleiche optische Verhalten wie eine glatte Oberfläche. Wir nehmen daher an, da Rauhmigkeiten dieser Größenordnung keinen Einfluß haben, daß sich die optischen Konstanten in unmittelbarer Nähe der LiF-Al-

Grenzfläche ändern. Dies könnte noch in der Auswertung unserer ATR-Kurven vorgetäuscht werden durch eine Übergangsschicht zwischen LiF und Al von der Dicke der Rauigkeitsamplituden. Die Berücksichtigung einer solchen Schicht nach der von Böttcher [148] verbesserten Maxwell-Garnett-Theorie [149] in den Anpassungsrechnungen erlaubt diesen Schluß jedoch nicht. Nur ein kleiner Teil der Diskrepanz zwischen den optischen Konstanten mit LiF- und Glas-Abstandsschicht könnte dadurch erklärt werden.

Den Einfluß von Oberflächenrauigkeiten konnten wir nur an der Metall-Luft-Grenzfläche untersuchen. Beim ATR-Experiment laufen die Oberflächenwellen jedoch auf der Dielektrikum-Aluminium-Grenzfläche entlang. Das am besten elektronenoptisch untersuchte MgF_2 wächst säulenartig auf [96] ; die Korngrenzen richten sich parallel zur Richtung des einfallenden Dampfstrahles aus (s. Abb.1 in [96]). Der Durchmesser der Säulen beträgt etwa 100 Å. Selbst wenn die dadurch gebildete Oberfläche ideal glatt wäre, sollten die optischen Eigenschaften des darübergedampften Aluminiums wenigstens in der Nähe der Grenzfläche beeinflußt werden. Wir machen uns dazu folgendes Bild:

Das aufgedampfte Aluminium übernimmt quasi im Abdruckverfahren die Struktur der dielektrischen Schicht. So können sich nur Kristallite bis zu einem Durchmesser von eben 100 Å ausbilden, während ihr Durchmesser auf amorphen Glasunterlagen in der Größenordnung von 1000 Å ist [150] .Dadurch erhöht sich das Volumen der Korngrenzen. Das darin enthaltene Aluminium hat keine Gitterstruktur mehr; es wird vielmehr in einer quasi amorphen Phase vorliegen. In der Nähe der Grenzfläche haben wir somit kein rein polykristallines Material mehr, sondern eine Mischung aus ungeordneter und geordneter (kristalliner) Phase. Erst weiter entfernt sollten sich größere Kristallite ausbilden können, so daß der Volumenanteil der Korngrenzen wieder zu vernachlässigen ist.

Im ATR-Experiment messen wir also den Brechungsindex der Mischsubstanz. In deren ungeordneter Phase kann der Interbandübergang nicht vorkommen, da er erst durch den Einfluß der Brillouinzonengrenzen auf die Energiezustände möglich wird. Eine Brillouinzone ist aber eine Gittereigenschaft, die im ungeordneten Material verloren geht. Die Mischsubstanz, die wir in der Nähe der Grenzfläche durch Aufdampfen von Aluminium auf die Abstandsschicht herstellen,

sollte also in der Umgebung des Interbandüberganges wesentlich kleinere optische Konstanten als rein polykristallines Material zeigen. Ein solches Zwei-Phasen-Modell ist von Hunderi [142] gerechnet worden, um die optischen Eigenschaften von Aluminium, das bei tiefen Temperaturen aufgedampft und untersucht wurde [141], im Bereich des 1.5 eV - Interbandüberganges zu erklären. Mit abnehmender Temperatur schrumpft der ϵ_2 -Peak (s. Abb. 6.13) . Hunderi deutet diesen Effekt mit einer Zunahme der ungeordneten Phase. Er nimmt an, daß die optischen Eigenschaften der geordneten Phase gleich denen des rein polykristallinen Materials, diejenigen der ungeordneten jedoch die eines freien Elektronengases mit neu zu bestimmenden Parametern ω_p und γ (s. Gl. (2.22)) sind. Analog stellen wir uns die Deutung unserer Ergebnisse vor. In Abb. 6.11 ist zu sehen, daß die Theorie des Zwei-Phasen-Modells qualitativ unsere kleinen optischen Konstanten erklärt (gestrichelte Linie).

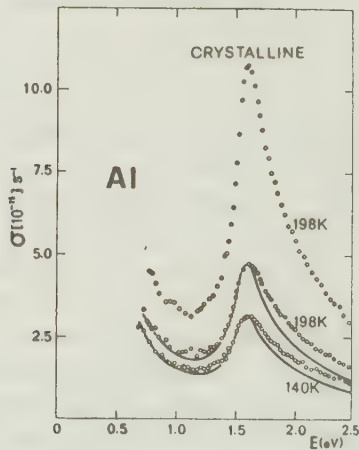


Abb. 6.13: Aus Hunderi [142] :

Gemessene und berechnete (ausgezogene Linien) optische Leitfähigkeit σ ($\sigma = \omega \epsilon_2 / 4\pi$) bei zwei Substrattemperaturen. Zum Vergleich sind die Werte des kristallinen Zustandes bei 198 K eingetragen.

Die "Theorie"-Kurve ist direkt aus der Arbeit von Hunderi [142] übernommen (s. Abb. 6.13) ; dabei besitzt die Verschiebung der energetischen Lage des Maximums keine Bedeutung, da die eingezeichnete Kurve zur Interpretation der Messung bei 198 K diente. Mit abnehmender Temperatur wandert nämlich der Interbandpeak zu etwas höheren Energien [136] . Unverständlich ist uns allerdings, daß die Plasmafrequenz ω_p der ungeordneten Phase, deren Volumenanteil hier 34 % beträgt, in energetischen Einheiten nur 5 eV ist, während für das kristalline Material gilt: $\omega_p = 12.7$ eV. Das kann man weder durch eine Änderung der Elektronendichte, noch der effektiven Elektronenmasse erklären, die dem Quadrat der Plasmafrequenz proportional bzw. umgekehrt proportional ist.

6.4 Dispersion von Oberflächenwellen auf Wolfram

6.4.1 Probenpräparation

Auf ein rotierendes 60° -Prisma aus IRG-3-Glas (Schott) wurde im Ultrahochvakuum (Basisdruck $\sim 1 \cdot 10^{-9}$ torr) eine dielektrische Abstandsschicht aus LiF bzw. MgF_2 aufgebracht. Anschließend wurde Wolfram mit der Elektronenkanone verdampft. Wolfram ist eines der hochschmelzendsten Materialien, die es gibt. Sein Schmelzpunkt beträgt $3395^\circ C$; bei dieser Temperatur ist sein Dampfdruck $1.8 \cdot 10^{-2}$ torr [151] . Aus diesem Grunde war die Abstrahlung des heißen Aufdampf gutes enorm; die Temperatur des Substrates bzw. der Abstandsschicht wurde stark erhöht, da die Aufdampf rate nicht über $1 \text{ \AA/sec}$ gesteigert werden konnte. Bei höherer Leistung der Elektronenkanone platzten nämlich glühende Metallpartikel von der Metallprobe ab. Um die Wärmebelastung in Grenzen zu halten, wurde intermittierend aufgedampft: 3 min. Aufdampfzeit, 3 min Pause, 3 min Aufdampfzeit usw. . Dabei stieg der Druck bis auf etwa $1 \cdot 10^{-7}$ torr; in den Pausen fiel er fast bis auf den Basisdruck zurück. Die so hergestellten W-Schichten waren nicht ganz so glänzend und spiegelnd wie auf den Polarisator-Prismen (s. Kap. 6.5) . Wir führen das auf eine durch höhere Wärmebelastung ausgelöste Umkristallisation der Abstandsschicht zurück, die dadurch rauher wurde. Die massiven (3mm $\varnothing$), aber sehr reinen Proben (Verunreinigungen < 70 ppm; Johnson Matthey Chemicals Limited) strahlen

nämlich wegen ihrer größeren Fläche wesentlich mehr ab als der normale W-Draht (0,8 mm $\varnothing$; 99.9 %), den wir zur Bedampfung der Polarisator-Prismen verwendeten.

Wir vermuten, daß auch hier eine Glas-Abstandsschicht bessere ATR-Proben liefert. Wahrscheinlich ist sie unempfindlicher gegen die Temperaturbelastung als eine Fluoridschicht; zum anderen sollte Glas auch verwendet werden, um einen Einfluß der Abstandsschicht auf die Struktur des darüber gedampften Metalls zu vermeiden (s.Kap. 6.3.5). Dieses Ergebnis hatten wir jedoch erst später durch die Messungen an Aluminium gewonnen.

6.4.2 Meßergebnisse und Diskussion

Wegen der schlechten Präparationsbedingungen haben wir nicht versucht, optische Konstanten zu bestimmen. Auch die Messung der Dispersion ist deshalb unter einem gewissen Vorbehalt zu sehen. Trotzdem haben wir hier nicht auf die Darstellung unserer Ergebnisse verzichtet. Einmal konnten wir nämlich demonstrieren, daß auf Metallen nicht nur Fanowellen, sondern in geeigneten Frequenzbereichen auch Uller-Zenneck-Wellen laufen können. Zum anderen sind die gemessenen Resonanzkurven (s.Abb. 6.14) notwendig für das Verständnis des ATR-Polarisators (s.Kap. 6.5) .

Die theoretische Diskussion [8, 9] (s.Kap. 2.1) hat gezeigt, daß sich auf Materialien mit $\varepsilon_2 \gg \varepsilon_1 > 0$ Oberflächenwellen vom Uller-Zenneck-Typ ausbreiten können. Am Beispiel des Halbleiters Tellur haben wir diesen Fall genauer studiert (s.Kap. 4.3). An Metallen lagen keine entsprechenden Untersuchungen vor. Erst während der Anfertigung dieser Arbeit wurden an Silber oberhalb der Plasmafrequenz analoge Resonanzen gemessen [11] , jedoch ohne den hier verwendeten theoretischen Hintergrund interpretiert.

Wolfram ist, bis auf die erwähnten Präparationsschwierigkeiten, gut geeignet, um Uller-Zenneck-Wellen auf einer Metalloberfläche anzuregen. Im sichtbaren Spektralbereich gilt $\varepsilon_2 \gg \varepsilon_1 > 0$, da hier der Einfluß von Interbandübergängen dominierend ist [152-155] . Im nahen Infrarot bestimmen wieder mehr die freien Elektronen die optischen Eigenschaften, so daß ε_1 stark negativ wird mit $|\varepsilon_1| \gg \varepsilon_2$ [152] . Man sollte also bei einer Wellenlänge von etwa 0,9 μ den Übergang zu Fanowellen beobachten können. Das experi-

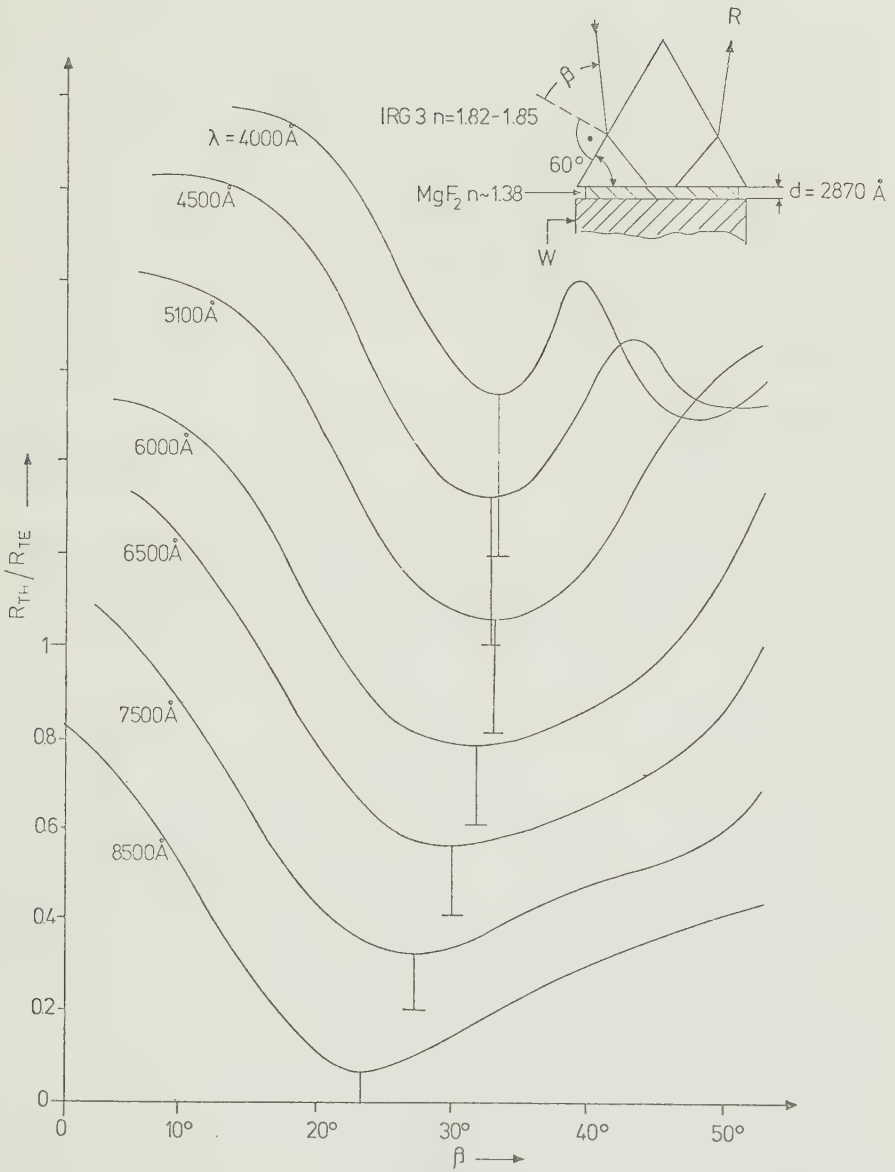


Abb. 6.14: ATR-Resonanzkurven an Wolfram mit MgF_2 -Abstandsschicht.

mentelle Ergebnis [156] zeigt, daß dabei keine drastischen Änderungen auftreten. Die Resonanzkurven gehen stetig ineinander über. Die Dispersionskurve der Oberflächenwellen auf einer LiF-W-Grenzfläche, aus den Minima nach Gl. (2.7) gewonnen, schneidet allerdings bei etwa 1.9 eV ($= 6500 \text{ \AA}$) die "Lichtgerade" (s. Abb. 6.15). Hierbei wurde ein Brechungsindex von 1.30 für die LiF-Abstandsschicht angenommen (s. Kap. 6.2.3). Die Diskrepanz zur Theorie führen wir einmal auf die Probenqualität, zum anderen auf den Einfluß des Prismas bei der Anregung von Uller-Zenneck-Wellen zurück. (Vgl. die Diskussion der Dispersion von Oberflächenwellen auf Tellur: Kap. 4.3.6) .

6.5 Ein ATR-Polarisator für das nahe Infrarot

Oberflächenwellen können nur mit p-polarisiertem Licht angeregt werden. Strahlt man mit unpolarisiertem Licht unter dem Resonanzwinkel von Fanowellen auf die Basisfläche eines ATR-Prismas (Anordnung nach Abb. 2.4), wird der p-polarisierte Anteil stark im oberflächenaktiven Medium absorbiert, der s-polarisierte dagegen total reflektiert. Durch Hintereinanderschalten einer

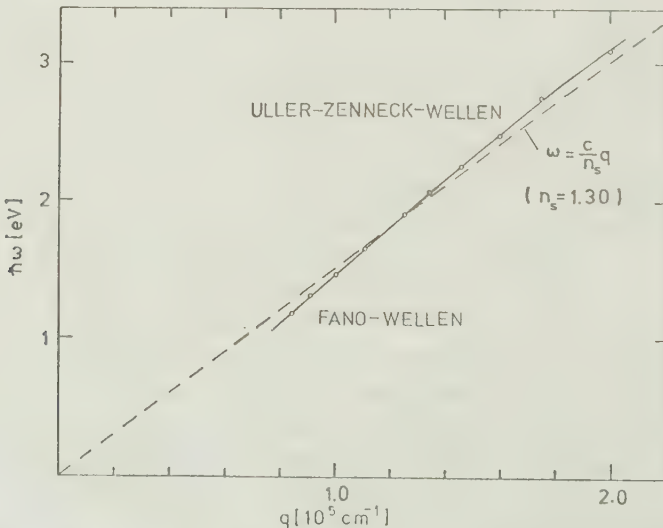


Abb.6.15: Dispersion von Oberflächenwellen auf einer LiF-W-Grenzfläche.

gewissen Anzahl von ATR-Prismen sollte dadurch ein guter Polarisator entstehen. Seine Eigenschaften werden bestimmt durch die Einzelelemente. Die Winkelakzeptanz wird durch die Breite der $R_p(\alpha)$ -Resonanzkurve festgelegt, der spektrale Arbeitsbereich durch die $R_p(\omega)$ -Kurve. Aus der Anzahl der Prismen folgt der Polarisationsgrad und gleichzeitig die Transmission.

Mit dem Bau eines Polarisators für das nahe Infrarot konnten wir unsere Überlegungen konkretisieren. Dieser Bereich ist interessant, da ab 3μ keine guten Polarisatoren mehr existieren. Kalkspat (Glan-Thompson-Prismen) wird hier undurchlässig; brauchbare dichroitische Folien gibt es bereits ab 2.8μ nicht mehr. Drahtgitterpolarisatoren haben im nahen Infrarot einen relativ schlechten Polarisationsgrad; das gleiche gilt für die nach dem Brewster-Prinzip arbeitenden Selen-Plattensätze (Übersicht über Polarisatoren: s. [157]).

Als oberflächenaktives Medium wählten wir Wolfram, das im nahen Infrarot wesentlich breitere ATR-Resonanzkurven (s. Abb. 6.14) liefert als Metalle, die hier bereits ein reines "Drude-Verhalten" (s. Gl. (2.22)) zeigen (z.B. Ag, Au, Al ab 3μ). Die Abstandsschichten waren aus LiF. Das Hintereinanderschalten der Einzelelemente wurde durch zwei stabförmige, in V-Form angeordnete Prismen aus IRG-2-Glas (Schott) erreicht (s. Abb. 6.16). Die Dicke der LiF-Schichten wurde von Fläche zu Fläche geändert, so daß die Wellenlänge maximaler Absorption ebenfalls verschieden war und dadurch den spektralen Arbeitsbereich vergrößerte. Erste Ergebnisse dieses Polarisator-Typs zeigt Abb. 6.17 im Vergleich mit einer herkömmlichen, dichroitischen Polarisationsfolie (P-IR2 von Käsemann). Die Transmission T zweier Polarisatoren mit paralleler bzw. gekreuzter Durchlaßrichtung ist als $\log 1/T$ für unpolarisiertes Licht gegen die Wellenlänge aufgetragen. Die Auslöschung $T_{\perp}$ ist über den gesamten untersuchten Spektralbereich besser als die der Folie, die Durchlässigkeit $T_{\parallel}$ jedoch geringer. Sie nimmt bei den kurzen Wellenlängen stark ab, da wir hier in das Gebiet der Uller-Zenneck-Wellen kommen (s. Kap. 6.4), wo auch der s-polarisierte Anteil des Lichtes nicht mehr total reflektiert wird. Insgesamt ließe sich die Durchlässigkeit jedoch noch steigern durch ein

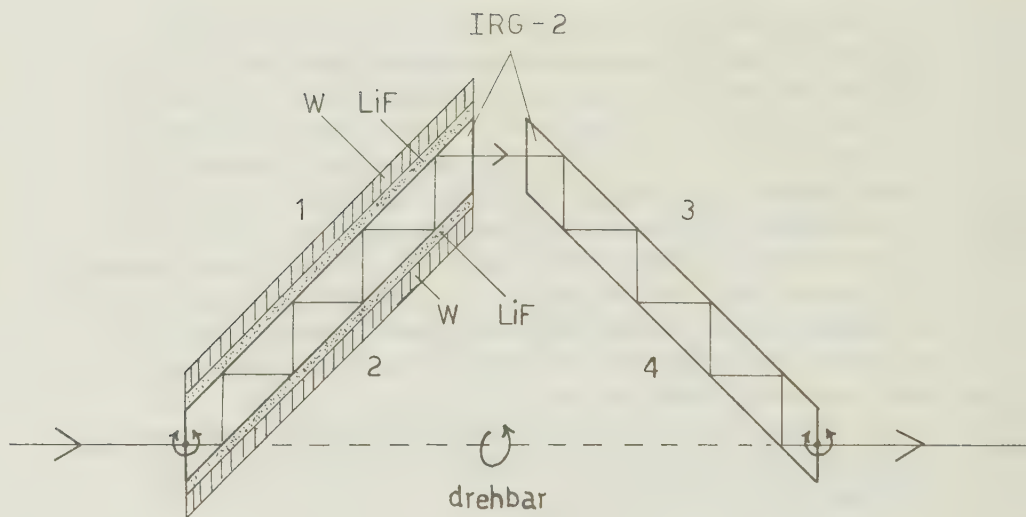


Abb. 6.16: ATR-Polarisator aus zwei stabförmigen Prismen für 16-fache innere Reflexion. Das eingestrahelte Lichtbündel tritt in Geradeausrichtung ungespiegelt und unversetzt aus. Flächen 1 und 2 mit LiF ($d = 4400$ und $5100 \text{ \AA}$) und W ($d > 2000 \text{ \AA}$) bedampft.

Aneinanderkitten der zwei gegenüberliegenden Prismenflächen (s. Abb. 6.16) und Entspiegeln der Ein- und Austrittsflächen des Lichtes. Die Reflexionsverluste betragen bei senkrechtem Durchgang durch eine Fläche etwa 9 % wegen des großen Brechungsindex des Glases.

Aus apparativen Gründen wurde der Polarisator nur bis $2,5 \mu$ Wellenlänge ausgemessen. Seine Brauchbarkeit im Längeren ist jedoch noch nicht durch das physikalische Prinzip, sondern die Durchlässigkeit des IRG-2-Glases beschränkt, die ab $\sim 3 \mu$ stark abnimmt. Mit der Wahl spezieller Materialien für Prisma, Abstandsschicht und oberflächenaktives Medium kann man einen guten Polarisator für nahezu jeden Spektralbereich bauen.

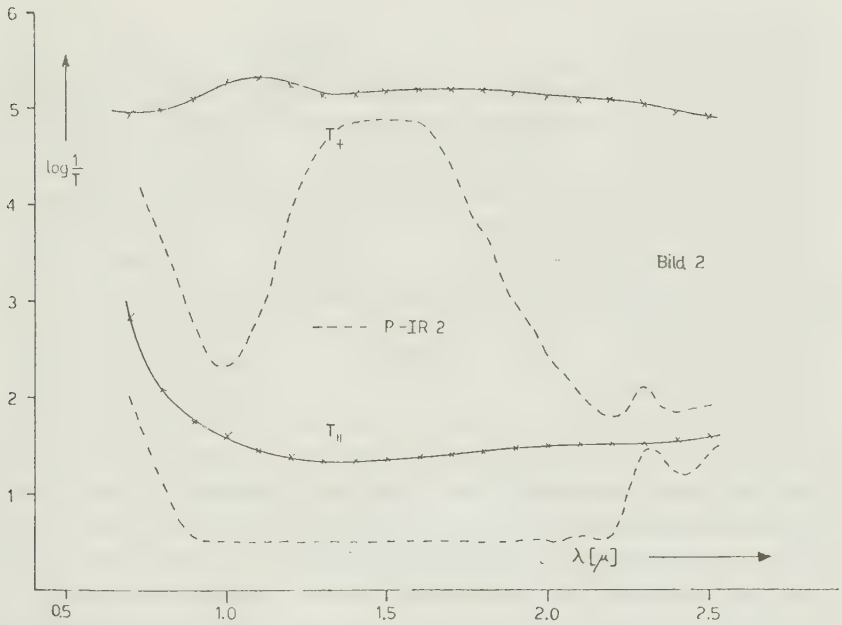


Abb. 6.17: Transmission T zweier Polarisatoren nach Abb. 6.16 mit paralleler ($T_{||}$) bzw. gekreuzter ($T_{\perp}$) Durchlaßrichtung als $\log 1/T$ in Abhängigkeit von der Wellenlänge; zum Vergleich die entsprechenden Kurven einer dichroitischen Polarisationsfolie (Käsemann).

7. Oberflächenwellen und optische Moden (Integrierte Optik)

7.1 Einleitung

Oberflächenwellen wurden in Kap. 2.1 eingeführt. Sie sind verwandt den optischen Moden in dünnen dielektrischen Schichten [158], von deren Grenzflächen die Felder ebenfalls exponentiell nach außen abfallen. Auch ihr Wellenvektor q , der parallel zur Schichtoberfläche in Ausbreitungsrichtung liegt, ist größer als der Wellenvektor ebener Wellen im umgebenden Medium. Er wird begrenzt durch den Brechungsindex der Schicht (s. Abb. 7.2a und 7.4). Optische Moden können über ein Prisma angeregt werden [25]. Es gelten hierbei die gleichen Überlegungen wie in Kap. 2.2 bei der Einführung der ATR-Methode. Wenn man die Auskopplung von Licht ins Prisma verhindert, können sie je nach Qualität der dielektrischen Schicht zentimeter- ja meterweit laufen [z.B. 159]. Man hat so im optischen Bereich ein Analogon zu den Moden im Hohlleiter der Mikrowellentechnik. Dies nutzt die sogenannte Integrierte Optik aus, deren Ziel es ist, in loser Analogie zu den bekannten integrierten, elektrischen Schaltkreisen optische zu bauen [160-162]. In den optischen Schaltkreisen wird die Information von moduliertem Licht getragen, das als optische Mode in dünnen, dielektrischen Schichten geführt wird. Spezielle Bauelemente (s. auch Kap. 7.4 und 7.5) ermöglichen es, die Lichtströme zu verkoppeln, filtern, modulieren, verstärken, polarisieren usw. Optische Schaltkreise werden als Zwischenverstärker in optischen Nachrichtenübertragungssystemen (Glasfaserkabel), sowie bei logischen Aufgaben in der optischen Datenverarbeitung von Bedeutung sein [163]. Die hohe Frequenz des Laserlichtes und die dadurch mögliche, gegenüber konventioneller Hochfrequenztechnik um Größenordnungen gesteigerte Übertragungskapazität macht die optische Datenübertragung so attraktiv.

Eine optische Mode kann man sich als ebene Welle vorstellen, die sich zickzackförmig in der Wellenleiterschicht fortbewegt und nach zwei totalen Reflexionen an den Grenzflächen wieder günstig mit sich selbst interferiert (s. Abb. 7.1) [164]. Das ist nur möglich, wenn der Brechungsindex n_s der Schicht größer ist als derjenige der

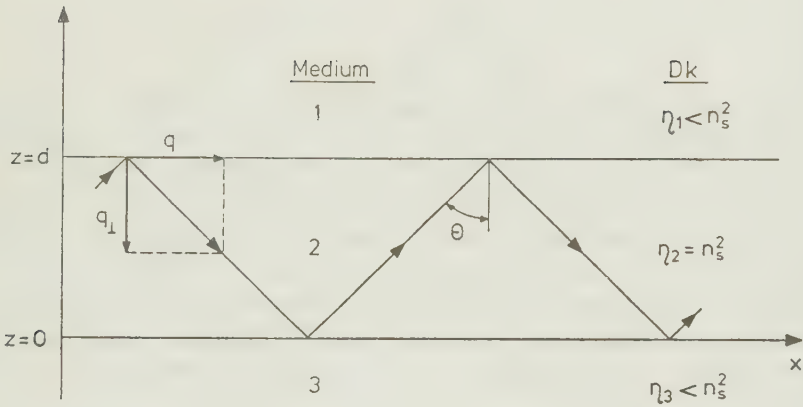


Abb. 7.1: Schematisierte Ausbreitung einer optischen Mode als zickzackförmige Fortbewegung einer ebenen Welle. η_i : Dielektrizitätskonstante der drei Medien ($i=1,2,3$).

angrenzenden Medien. Außerdem muß die folgende Phasenbedingung erfüllt sein:

$$2 \varphi_d + \varphi_{21} + \varphi_{23} = 2\pi m \quad m = 0, 1, 2 \dots \quad (7.1)$$

Hierbei beschreibt φ_d die Phasenänderung der Welle beim einmaligen Durchlaufen der Schicht; φ_{12} bzw. φ_{23} ist der Phasensprung bei der Totalreflexion am Medium 1 bzw. am Medium 3. Der elektrische oder der magnetische Feldvektor kann in y-Richtung liegen; das führt zu transversal elektrisch (TE-) oder transversal magnetisch (TH- oder in anderer Nomenklatur TM-) polarisierten optischen Moden.

Gleichung (7.1) ist die implizite Dispersionsrelation $\omega(q)$ der optischen Moden. Ihre Berechnung reduziert sich auf die Herleitung der Phasensprünge, die man jedoch leicht aus den Grenzbedingungen der Felder oder den Reflexionskoeffizienten gewinnen kann:

$$\varphi_d = 2dq_{\perp} ; \varphi_{21}^{\text{TH}} = -2\arctg \frac{\eta_2 q_{\perp}}{\eta_1 q_{\parallel}} ; \varphi_{21}^{\text{TE}} = -2\arctg \frac{q_{\perp}}{q_{\parallel}} \quad (7.2)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } q_i &= (q^2 - \eta_i \omega^2/c^2)^{1/2} & i &= 1,3 \\ q_{\perp} &= (\eta_2 \omega^2/c^2 - q^2)^{1/2} \end{aligned}$$

Hierbei ist η_i das Quadrat des jeweiligen Brechungsindex und d die Schichtdicke. In Abb. 7.2a ist als Beispiel die $d(q)$ -Beziehung für TH- und TE-Moden bei fester Frequenz angegeben. Sie folgt explizit aus Gl. (7.1). Diese Form der Darstellung und nicht $\omega(q)$ mit d als Parameter wird in der Integrierten Optik häufig benutzt, da meistens die (Laser-) Frequenz festliegt und deshalb nur die Schichtdickenabhängigkeit der Moden interessiert (s. auch Kap. 7.4 und 7.5). Man kann direkt ablesen, wieviel optische Moden sich in einer Schicht bei vorgegebener Dicke ausbreiten können.

7.2 Optische Moden in einem einseitig von Metall begrenzten Wellenleiter

Wird die Totalreflexion auf einer Seite der Wellenleiterschicht durch die nahezu totale Reflexion einer Metalloberfläche ersetzt, ändert sich der entsprechende Phasensprung in Gl. (7.1):

$$\varphi_{2m}^{\text{TH}} = -2 \arctg \frac{\eta_2 q_m}{\varepsilon q_{\perp}} ; \quad \varphi_{2m}^{\text{TE}} = -2 \arctg \frac{q_m}{q_{\perp}} \quad (7.3)$$

$$\text{mit } q_m = (q^2 - \varepsilon \omega^2/c^2)^{1/2}$$

Hierbei ist ε die Dielektrizitätskonstante des angrenzenden Metalls. Ist ε komplex, wird auch φ_{2m} und damit q komplex. Sein Imaginärteil beschreibt die Dämpfung der Moden in Ausbreitungsrichtung [165, 166]. Interessiert man sich nur für das Dispersionsverhalten, kann man mit reellem $\varepsilon = \varepsilon_1$ rechnen, falls $\varepsilon_2 \ll |\varepsilon_1|$, wie es bei hochreflektierenden Metallen wie Silber und Aluminium im sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich der Fall ist. Auf diese Näherung haben wir uns im folgenden beschränkt.

Abb. 7.2 zeigt, wie der Einfluß einer metallischen Grenzfläche das Verhalten der optischen Moden ändert. Sie sind wieder auf den q -Bereich $\omega/c < q < n_g \omega/c$ beschränkt, mit Ausnahme der $m=0$ TH-Mode. Ihr kleinster Wellenvektor ist $q = (\omega/c)(\varepsilon/\varepsilon + 1)^{1/2}$ bei

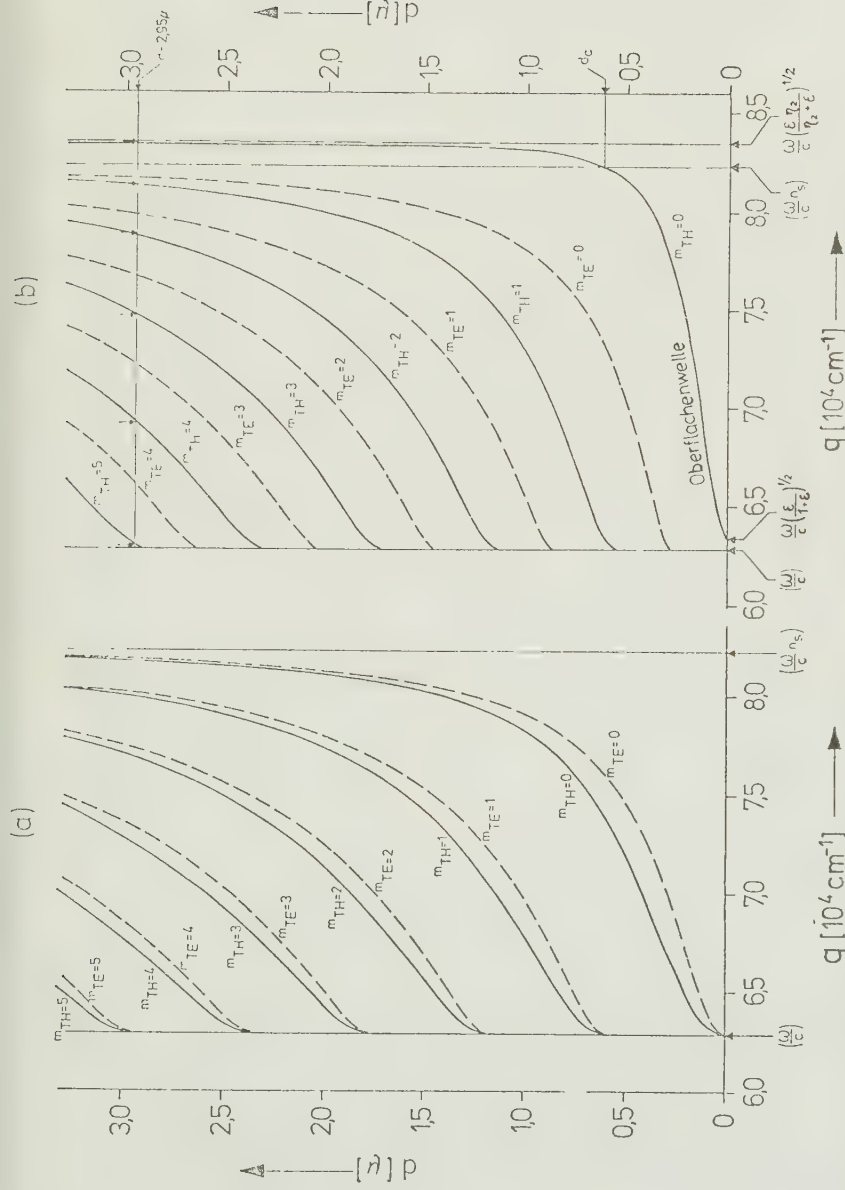


Abb. 7.2: Theoretische Beziehung zwischen Dike d und Wellenzahl q (= Betrag des Wellenvektors) der TH- und TE-Moden in einer dielektrischen Schicht mit Brechungsindex $n_2 = \eta_2/2 = 1.31$ (LiF) bei einer Vakuumwellenlänge von 1μ . (a): Symmetrischer Wellenleiter mit Luft auf beiden Seiten ($\eta_1 = \eta_3 = 1$). (b): Unsymmetrischer Wellenleiter, auf einer Seite durch Aluminium ($\eta_1 = \epsilon = -60$), auf der anderen durch Luft ($\eta_3 = 1$) begrenzt. Experimentelle Werte sind als Pfeile eingetragen.

$d = 0$. Das ist identisch mit Gl. (2.3) und entspricht deshalb einer ungestörten Oberflächenwelle auf einer Metall-Luft-Grenzfläche. Bei der Schichtdicke d_c

$$d_c = \frac{c}{\omega n_s^2} \left(\frac{-\epsilon}{(n_s^2 - \epsilon)^{1/2}} - \frac{1}{(n_s^2 - 1)^{1/2}} \right) \quad (7.4)$$

ist $q = n_s \omega / c$. Dies ist der Grenzwert der übrigen Moden. Hier wird $q_{\perp} = i q_{\perp}'$ mit $q_{\perp}' = (q^2 - n_s^2 \omega^2 / c^2)^{1/2} > 0$, so daß die ebene Welle in der Schicht zu einer quergedämpften wird. Die elektromagnetischen Felder ziehen sich mit größer werdendem d und q mehr und mehr in die Nähe der Metall-Dielektrikum-Grenzfläche zurück. Für $d \rightarrow \infty$ ergibt sich wieder der Wellenvektor einer ungestörten Oberflächenwelle, diesmal auf der Metall-Dielektrikum-Grenzfläche. Bemerkenswert ist weiter, daß durch den Einfluß des Metalls die kleinste Dicke ("cut-off"-Dicke) bei der eine Mode bestimmter Modenzahl existieren kann, nicht mehr für TH- und TE-Polarisation übereinstimmt. Dies kann man zur Konstruktion einiger Bauelemente für die Integrierte Optik ausnützen (s. Kap. 7.5).

Experimentell haben wir optische Moden in einer von Metall begrenzten Schicht mit der in Abb. 7.3 gezeigten Anordnung untersucht [167]. (Sie entspricht der ATR-Anordnung nach Abb. 2.5) Eine 350 Å dicke Al-Schicht wurde bei 10^{-8} torr auf ein Prisma aus IRG-3-Glas gebracht. Unmittelbar danach wurde eine etwa 3 µ dicke LiF-Schicht über das Aluminium gedampft. An dieser Probe haben wir das Verhältnis der Reflektivitäten von TH- und TE-polarisiertem Licht in Abhängigkeit vom Einfallswinkel β gemessen. Das experimentelle Ergebnis bei einer Wellenlänge von 1 µ wird in Abb. 7.3 mit dem berechneten Resultat verglichen. Absorption durch Anregung von TH-polarisierten optischen Moden und der modifizierten Oberflächenwelle ($m_{TH} = 0$) zeigt sich als Minimum im Reflektivitätsverhältnis, Absorption durch Anregung TE-polarisierter Moden als Maximum. Mit Pfeilen ist die Position der TH- und TE-Moden eingezeichnet, wie sie mit Gl. (7.1) berechnet wurde. Die kleine Verschiebung gegenüber den Absorptionsmaxima kann durch den Einfluß des Prismas und die Vernachlässigung von ϵ_2 bei der Berechnung der Phasensprünge erklärt werden. Bei diesem Experiment konnte während der LiF-Aufdampfung der Substratteller noch nicht gedreht werden. Dadurch entstand eine leichte

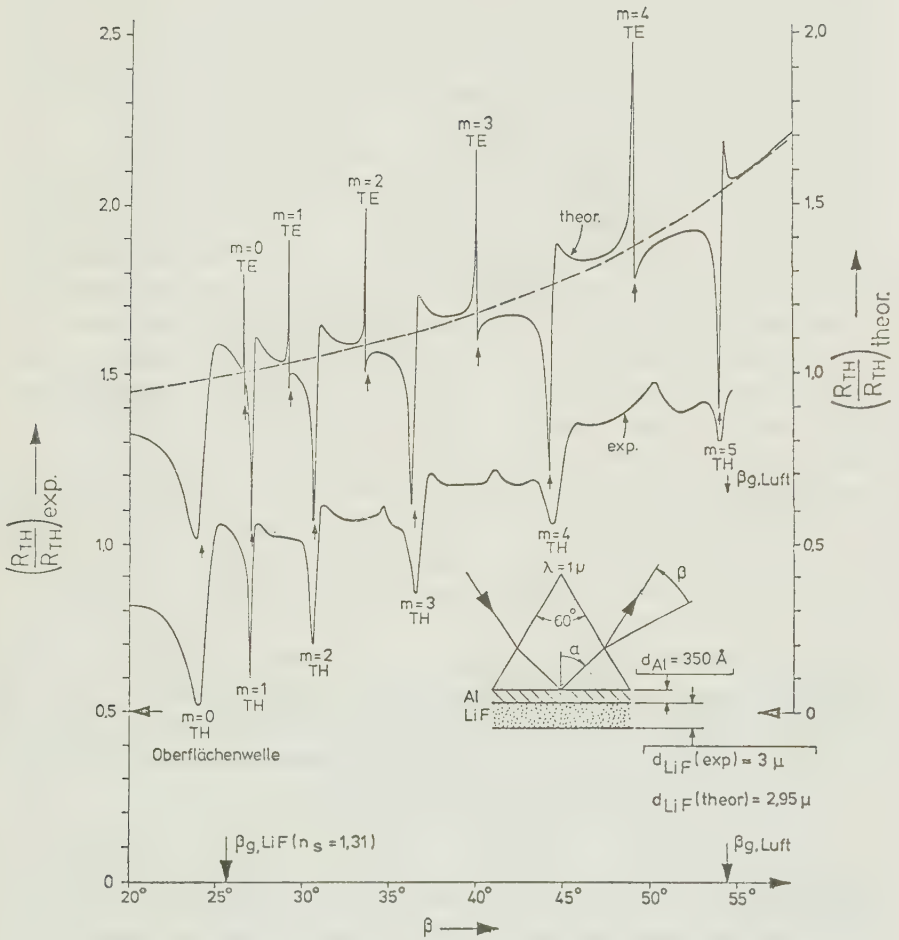


Abb.7.3: Experimentelle und theoretische Reflektivitätsverhältnisse in Abhängigkeit vom Einfallswinkel β bei einer Vakuumwellenlänge von 1μ . $\beta_{g, LiF}$, $\beta_{g, Luft}$: Grenzwinkel der Totalreflexion zwischen Prisma ($n_p = 1.8146$) und LiF ($n_s = 1.31$) bzw. zwischen Prisma und Luft. Die gestrichelte Linie zeigt das theoretische Reflektivitätsverhältnis für unendliche Dicke der Aluminiumschicht.

Schichtdickeninhomogenität, die die Beobachtung der sehr scharfen Strukturen der $m = 0$ und $m = 1$ TE-Moden verhinderte und die übrigen Absorptionsmaxima verbreiterte. (Bei den schärfsten Strukturen ist es zweifelhaft, ob hier die Näherung unendlich ausgedehnter ebener Wellen bei der Berechnung der Reflektivitäten [168] noch korrekt ist.) Aus der Breite der Resonanzkurven kann man direkt auf die Dämpfung der einzelnen Moden schließen. Die $m = 0$ TH-Mode, die modifizierte Oberflächenwelle, unterscheidet sich wieder von den übrigen: ihre Dämpfung ist bei weitem am größten, wie sich aus der Halbwertsbreite ablesen läßt. (Man muß hierzu die berechneten Kurven betrachten, um die künstliche Verbreiterung im Experiment durch die Schichtdickeninhomogenität auszuschalten.) Dies wurde von Suematsu et al. [169] zum Bau eines "integrierten" Polarisators für optische Moden ausgenützt. Für die übrigen Moden gilt, daß bei fester Modenzahl die Dämpfung bei TH-Polarisation größer ist als bei TE-Polarisation.

Aus der Winkelposition der Minima im Reflektivitätsverhältnis wurden mit Gl. (2.7) die Wellenvektoren q der TH-Moden berechnet. Ihre Werte bei einer Wellenlänge von 1μ sind in Abb. 7.2 als Pfeile eingezeichnet. Beste Übereinstimmung mit berechneten Kurven ergab sich bei einer LiF-Schichtdicke von 2.95μ . Dieser Wert wurde dadurch genauer bestimmt [170], als es mit der konventionellen Vielstrahlinterferenzmethode [55] bei großer Dicke möglich ist. Die Dispersionskurven $\omega(q)$ aller TH-Moden im nahen Infrarot sind in Abb. 7.4 dargestellt. Die Anzahl der Moden nimmt mit zunehmender Wellenlänge ab, in Einklang mit Gl. (7.1).

7.3 Optische Moden in einem beidseitig von Metall begrenzten Wellenleiter.

Eine dielektrische Schicht, die von beiden Seiten von Metall (-Schichten) begrenzt wird, ist als Fabry-Perot-Interferenzfilter seit langem bekannt z.B. [110]. Für die Integrierte Optik ist diese Geometrie interessant, um z.B. optische Moden durch angelegte Felder modulieren zu können. Auch in der Theorie der Oberflächenplasmaschwingungen (Oberflächenwellen) wurde diese Anordnung näher untersucht. Otto [66] konnte zeigen, daß die Oberflächenwellen, die an den Metall-Dielektrikum-Grenzflächen entlanglaufen,

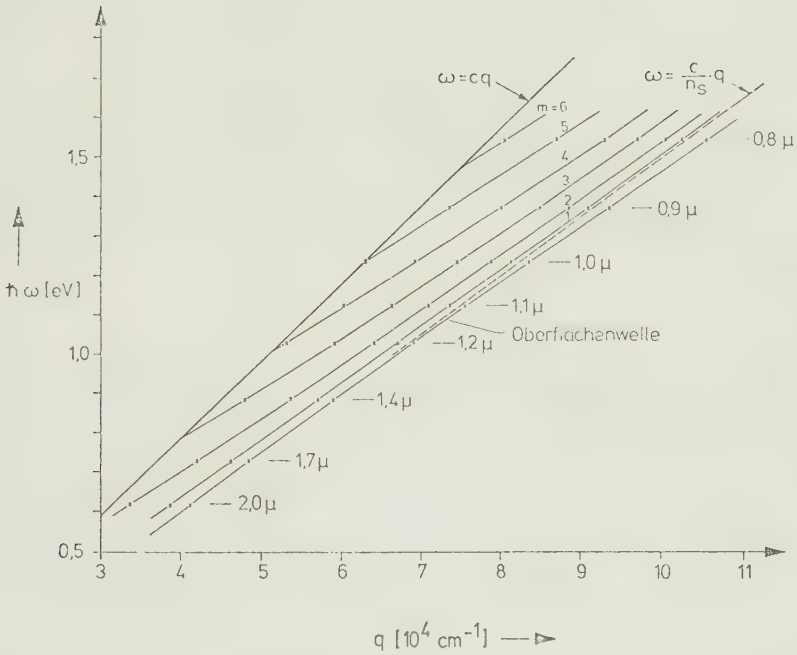


Abb. 7.4: Experimentelle Dispersionsrelationen der modifizierten Oberflächenwelle ($m_{\text{TH}}=0$) und der TH-polarisierten optischen Moden im nahen Infrarot, gemessen an der in Abb. 7.3 dargestellten Probe.

bei genügend kleiner Schichtdicke miteinander koppeln und zwei verschiedene Schwingungstypen bilden. Die Dispersionskurve des ω_+ -Zweiges (unsymmetrische Feldverteilung bzgl. Spiegelung an der Schichtmitte) konnte er vollständig berechnen; sie verläuft rechts von der Lichtgeraden $\omega = q \cdot c/n_s$. Die Dispersionskurve des höherenergetischen ω_- -Zweiges (symmetrisch) "stoppte" jedoch an der Lichtgeraden [66] .

Mit der oben skizzierten, einfachen Theorie der optischen Moden (Gl. 7.1) und (7.3)) läßt sich auch die Dispersion der gekoppelten Oberflächenwellen gewinnen. In Abb. 7.5 ist als Beispiel die

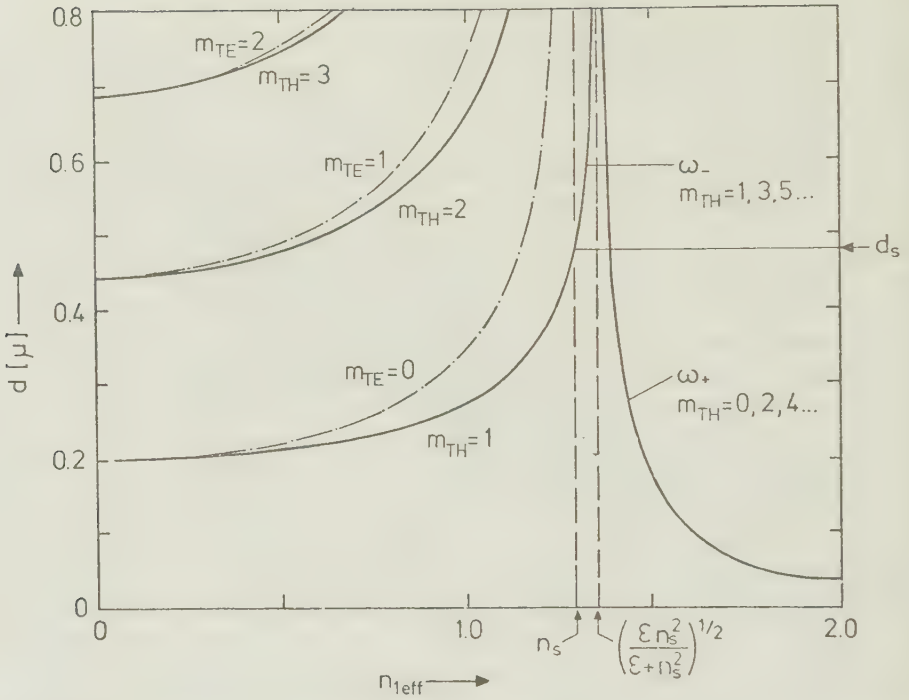


Abb. 7.5: Theoretische Beziehung zwischen Dicke d und "effektivem Brechungsindex" $n_{\text{eff}} = q c / \omega$ der TH- und TE-Moden in einem symmetrischen, auf beiden Seiten von Metall (Silber: $\epsilon = -17.6$) begrenzten dielektrischen Wellenleiter (LiF: $n_s = 1.31$) bei einer Vakuumwellenlänge von $6328 \text{ \AA}$.

theoretische Beziehung zwischen der Dicke d und dem "effektiven Brechungsindex" $n_{\text{eff}} = q c / \omega$ [175] (der quasi ein normierter Wellenvektor ist) eines beidseitig von Metall begrenzten Wellenleiters aufgetragen. In diesem Fall können schon bei $q=0$ ($n_{\text{eff}}=0$; senkrechter Lichteinfall) und diskreten Schichtdicken optische Moden existieren. Sie entsprechen den Transmissionsmaxima eines Fabry-Perot-Interferenzfilters.

Die $m = 1$ TH-Mode nähert sich nicht asymptotisch dem Wert $n_{\text{eff}}=n_s$ wie alle TE- und höheren TH-Moden, sondern überschreitet ihn bei d_s :

$$d_s = \frac{-2\epsilon}{n_s^2 q_m} \quad (7.5)$$

Dies entspricht dem Überschneiden der Lichtgeraden im ω - q -Diagramm. Hier wird q ($=iq'$) imaginär, so daß die optische Mode den Charakter zweier gekoppelter Oberflächenwellen annimmt, die mit wachsender Dicke entkoppeln und dem Wellenvektor ungestörter Oberflächenwellen auf Metall-Dielektrikum-Grenzflächen zustreben: $q = (\epsilon n_s^2 / (\epsilon + n_s^2))^{1/2} (\omega/c)$. Man kann zeigen, daß die Lösungen der Gleichung (7.1) im Bereich $n_s < n_{1\text{eff}} < (\epsilon n_s^2 / (\epsilon + n_s^2))^{1/2}$ mit der aus der Theorie der Oberflächenwellen bekannten ω_- -Mode identisch sind. Gleichung (7.1) geht nämlich für $m = 1, 3, 5, \dots$ über in

$$\epsilon = - n_s^2 \frac{q_m}{q'_\perp} \tanh \left(\frac{q'_\perp d}{2} \right) \quad (7.6)$$

Dies ist die übliche Schreibweise der Dispersion des ω_- -Zweiges gekoppelter Oberflächenwellen [66], der also nicht an der Lichtgeraden stoppt, sondern kontinuierlich in die Dispersionskurve einer optischen Mode ($m = 1, \text{TH}$) übergeht.

Bei größeren q -Werten existiert ein weiterer Dispersionsast, der mit der ω_+ -Schwingung identisch ist; für $m = 0, 2, 4, \dots$ geht Gl. (7.1) über in

$$\epsilon = - n_s^2 \frac{q_m}{q'_\perp} \operatorname{ctgh} \left(\frac{q'_\perp d}{2} \right) \quad (7.7)$$

Bei sehr kleinen Schichtdicken ist dies die einzige mögliche Lösung.

7.4 Ein neuartiger Koppler für die Integrierte Optik.

("tapered clad coupler")

Mit der Entdeckung des Prismenkopplers [25] (in etwas gegenüber Abb. 7.3 modifizierter Form um das Auskoppeln zu verhindern) begann 1969 die rasche Entwicklung der Integrierten Optik [z.B. 171]. Erst dadurch wurde es möglich, Licht mit hohem Wirkungsgrad in eine Wellenleiterschicht einzukoppeln.

Ein Prisma kann als massiver Glaskörper nicht in die optischen Schaltkreise integriert werden. Dies wurde erst mit der Entwicklung des Gitterkopplers [172] und des "tapered-edge"-Kopplers [173] möglich. Der letztere erlaubt, Licht in asymmetrische Wellenleiter einzukoppeln. Unser "tapered clad"-Koppler [174] ist mit ihm

physikalisch verwandt und gestattet, Licht mit hohem Wirkungsgrad in symmetrische Wellenleiter einzukoppeln. Sein Aufbau ist einfach: er besteht aus einem allmählichen Übergang von einem asymmetrischen zu einem symmetrischen Wellenleiter (s. Abb. 7.6).

Um seine Wirkungsweise verständlich zu machen, haben wir die Dickenabhängigkeit der optischen Moden in einem Wellenleiter mit Brechungsindex n_1 auf einem Substrat mit n_0 in Abhängigkeit vom "effektiven Brechungsindex" [175] $n_{1\text{eff}} = q c / \omega$ berechnet. Die Dicke D der Deckschicht mit n_2 wurde dabei als Parameter variiert (s. auch Abb. 7.7). Für TH-Moden lautet die implizite Beziehung $W(n_{1\text{eff}})$ wie folgt [174] :

$$\operatorname{tg}(q_1' W) = \frac{n_1^2 n_2^2 q_1' q_0 - n_0^2 n_1^2 q_1' q_2 A}{n_0^2 n_2^2 q_1' q_1' + n_1^2 n_1^2 q_0 q_2 A} \quad (7.8)$$

$$\text{mit } A = \frac{n_2^2 q_3 - n_3^2 q_2 + (n_2^2 q_3 + n_3^2 q_2) \exp(2 q_2 D)}{n_2^2 q_3 - n_3^2 q_2 - (n_2^2 q_3 + n_3^2 q_2) \exp(2 q_2 D)}$$

$$q_1' = (\omega/c) (n_1^2 - n_{1\text{eff}}^2)^{1/2} ; \quad q_i = (\omega/c) (n_{1\text{eff}}^2 - n_i^2)^{1/2} ; \quad i=0,2,3$$

Die analoge Beziehung für TE-Moden folgt aus Gl. (7.5), indem man Überall, außer in den Ausdrücken für q_1' und q_1 , setzt: $n_i^2 = 1$ ($i = 0, 1, 2, 3$). Für eine spezielle Kombination von Brechungsindizes, die wir in unseren Experimenten realisiert haben, ist die Dickenabhängigkeit in Abb. 7.7 dargestellt. Sie wurde mit drei verschiedenen Parametern D berechnet. $D = 0$ beschreibt einen asymmetrischen, $D = \infty$ einen symmetrischen Wellenleiter. $D = D_f = 1000 \text{ \AA}$ charakterisiert den Übergang.

Die Wirkungsweise des Kopplers erläutern wir an Hand des Diagramms für TE-Moden: Im symmetrischen ($D = \infty$) Wellenleiter der Dicke W_{OTE}^f kann sich eine TE-Mode ($m = 0$) mit $q = n_{\infty \text{ TE}} \omega / c$ ausbreiten. Die optischen Eigenschaften des Wellenleiters werden also durch den "effektiven Brechungsindex" $n_{\infty \text{ TE}}$ charakterisiert. Er wird kleiner, wenn die Dicke D der Deckschicht bei einem allmählichen Übergang von einem symmetrischen ($D = \infty$) zu einem asymmetrischen ($D = 0$) Wellenleiter abnimmt. Bei $D = D_f$ erreicht $n_{1\text{eff}}$ den Wert des

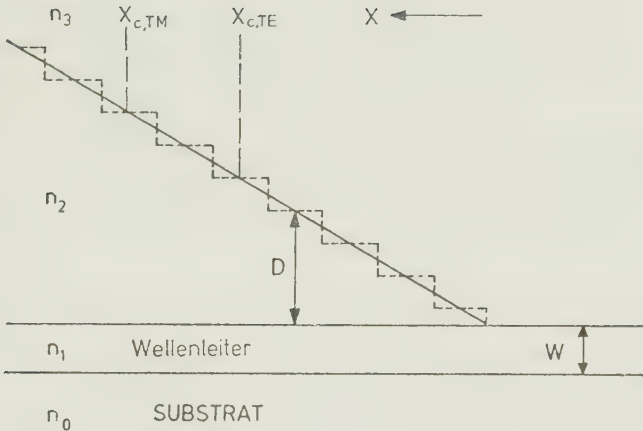


Abb. 7.6: Schematischer Aufbau des "tapered clad"-Kopplers.

Brechungsindex n_0 des Substrates, so daß die Ausbreitung einer optischen Mode nicht mehr möglich ist. Ihre Phasengeschwindigkeit erreicht den Wert der Phasengeschwindigkeit von ebenen Wellen im Substrat, so daß sie aus der Schicht bei der entsprechenden Stelle $x_{c, TE}$ in den Träger auskoppeln kann. Auch der umgekehrte Vorgang ist natürlich möglich: TE-Substratmoden [176] werden bei $x_{c, TE}$ in die $m=0$ TE-Mode transformiert. Ein Übergang von einem symmetrischen zu einem asymmetrischen Wellenleiter arbeitet also als Lichtwellenkoppler (Ein- bzw. Aus-Koppler) in die $m=0$ TE-Mode eines symmetrischen Wellenleiters, allerdings unter der Voraussetzung, daß seine Dicke W kleiner als W_{0TE} ist. Analoge Überlegungen gelten für den Fall der TH-Polarisation.

Verfolgt man das obige Konzept weiter, erkennt man interessante Möglichkeiten. Die Schichtdickenabhängigkeit sollte erlauben, Moden- und Polarisationsabhängige Koppler zu bauen. Dies ist in der Mitte der Abb. 7.7 angedeutet. Durch Wahl einer geeigneten Schichtdicke W des Wellenleiters mit $W_{1TE}^{as} < W < W_{1TH}^{as}$ wird es beispielsweise möglich sein, nur die $m = 1$ TH-Mode ein- oder auszukoppeln, während die $m = 1$ TE- und beide $m = 0$ Moden davon nicht berührt werden.

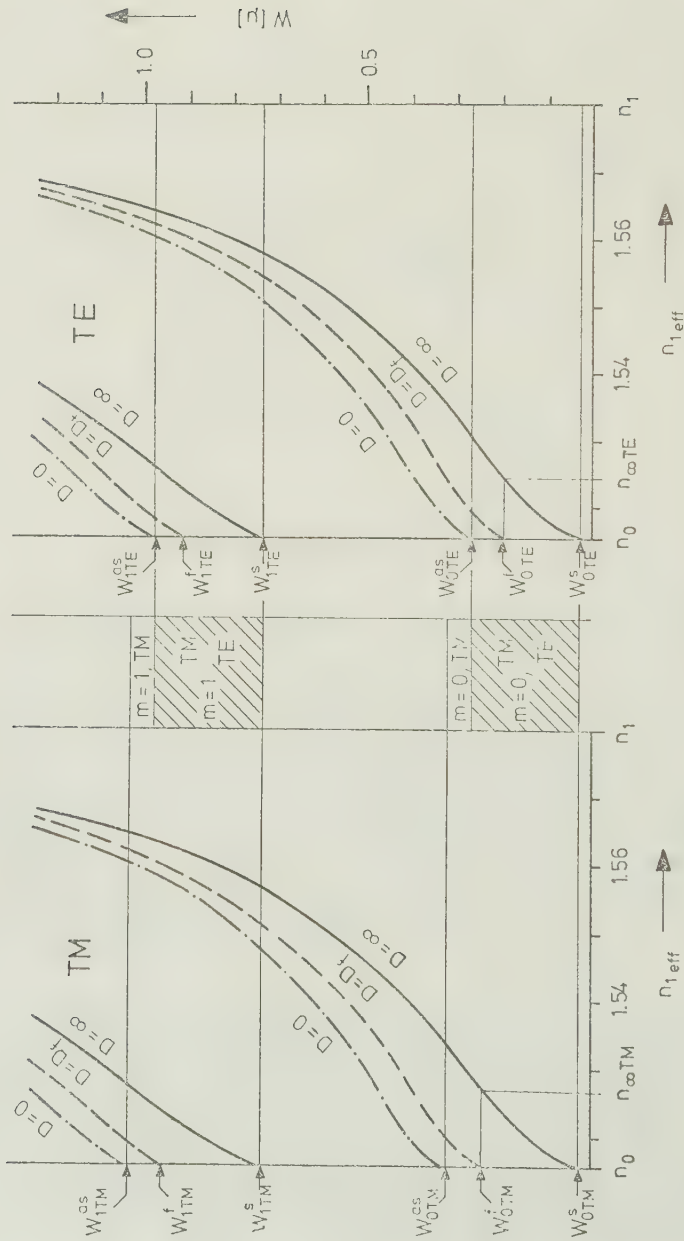


Abb. 7.7: Theoretische Beziehung zwischen Dicke W und "effektivem Brechungsindex" n_{1eff} der TM- (=TH-) und TE-Moden in einem Wellenleiter ($n_1=1.58$), der von einer Schicht ($n_2=1.5155$) der Dicke D bedeckt wird. n_0 (Substrat) = 1.5162. In der Mitte der Abb. ist angedeutet, in welche Mode der Übergang vom asymmetrischen zum symmetrischen Wellenleiter einzukoppeln gestattet.

Eine als optische Mode geführte Welle kann gebrochen und sogar total reflektiert werden (s. Abb. 7.8). Sie gehorcht dem Snellius'schen Brechungsgesetz in folgender Form:

$$\sin \theta_1 / \sin \theta_2 = n_{1\text{eff}}(2) / n_{1\text{eff}}(1) \quad (7.9)$$

Hierbei sind θ_1 und θ_2 die Winkel zwischen den Ausbreitungsrichtungen der optischen Mode und der Normalen auf der Grenze, die die Gebiete mit unterschiedlichem $n_{1\text{eff}}$ trennt. Falls $\theta_1 > \theta_g$ mit

$$\sin \theta_g = n_{1\text{eff}}(2) / n_{1\text{eff}}(1) \quad (7.10)$$

wird eine Mode total reflektiert. Die Gleichungen (7.9) und (7.10) sind vollkommen analog zur "normalen", dreidimensionalen Optik; allerdings geht der "effektive Brechungsindex" statt des gewöhnlichen in die Beziehungen ein.

Man kann $n_{1\text{eff}}$ nicht nur durch die Dicke D einer den Wellenleiter bedeckenden Schicht, sondern auch durch dessen eigene Dicke W verändern. Das bedeutet, daß auch in diesem Fall Ein- und Auskoppeln [173], Brechung [175] und Totalreflexion [173] möglich sind.

Wir führten unsere Experimente mit etwa 2700 Å dicken Wellenleitern aus Epoxydharz ($n_1=1.58$) durch, die aus der Lösung auf einen Glasblock aus gewöhnlichem Kronglas ($n_0=1.5162$) aufgebracht worden waren [177]. Das angrenzende Medium, mit dem der Übergang von einem asymmetrischen zu einem symmetrischen Wellenleiter realisiert wurde, war Immersionsöl, dessen Brechungsindex ($n_2=1.5155$) dem des Substrates sehr nahe kam.

Die schematische Anordnung von Ein- und Auskoppler ist in Abb. 7.8 dargestellt. Ein Glasplättchen verhindert, daß sich das Öl über den ganzen Wellenleiter ausbreitet. Durch Fokussieren (Winkeldivergenz $\sim 8^\circ$) eines TE- (oder TH-) polarisierten Laserstrahls ($\lambda = 6328 \text{ Å}$) durch das Substrat auf den Übergang ($x_{c,TE}$; $x_{c,TM}$), koppelt Licht in den Wellenleiter als $m = 0$ TE- (TH-) Mode ein. Sie läuft bis zum Ende der Ölbedeckten Fläche, wo sie vollständig auskoppelt. Von oben kann man die Ausbreitung der Mode im Streulicht verfolgen.

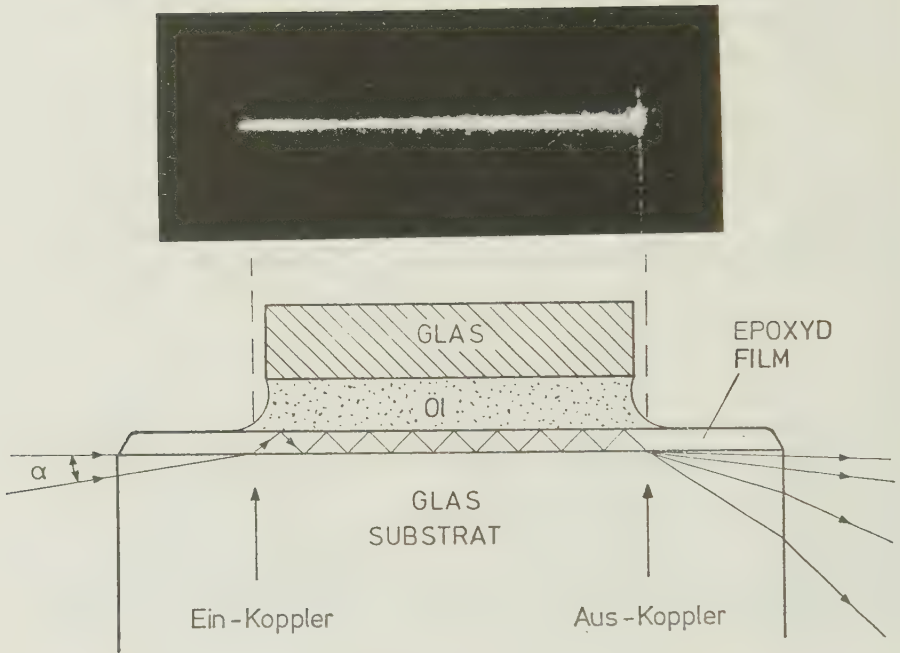


Abb.7.8: Schematische experimentelle Anordnung von Ein- und Aus-Koppler. Die optische Mode konnte von oben im Streulicht beobachtet werden. Laufstrecke: 18 mm.

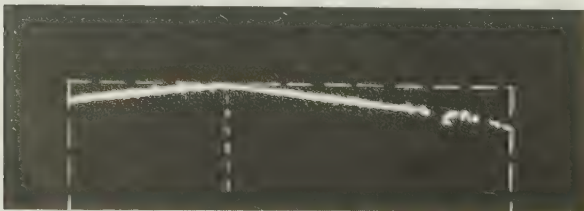


Abb. 7.10: Totalreflexion einer optischen Mode am Übergang vom symmetrischen zum asymmetrischen Wellenleiter. Einfallswinkel: 83° . Die ölbedeckte Fläche (symmetrischer Wellenleiter) ist angedeutet.

Wir haben den Wirkungsgrad des Einkopplers, d.h. den Prozentsatz der eingestrahnten Intensität, der als optische Mode in den Wellenleiter geht, mit einfachen Mitteln (Zylinderlinsen, Verschieben der Probe) optimiert. Dazu war es notwendig, die Intensitätsverteilung des eingestrahnten Lichtes der des ausgekoppelten anzupassen. Diese ließ sich jedoch nicht exakt messen, da das Streulicht aus dem Wellenleiter dies verhinderte. Außerdem bildete die Kante des Ölfilms, die ja den Koppler darstellt, über die Breite des eingestrahnten Laserlichtes keine gerade Linie. Trotz dieser Schwierigkeiten erzielten wir einen Einkoppel-Wirkungsgrad von etwa 70 % (s.Abb. 7.9). Er ist wesentlich größer als der des "tapered-edge"-Kopplers, der mit 25% angegeben wurde [173]. Wir bestimmten ihn durch die Messung der Reflektivität der Probe, die parallel zum Wellenleiter über den Einkoppler ($x_{c,TE}$, $x_{c,TM}$) hinweggeschoben wurde (s.Abb. 7.9). Dabei sank die Reflektivität bis unter 30 %.

In weiteren Experimenten konnten wir die Totalreflexion einer optischen Mode am Übergang vom symmetrischen zum asymmetrischen Wellenleiter demonstrieren (s.Abb. 7.10). Der Grenzwinkel der Totalreflexion θ_g betrug 82° auf Grund der verwendeten Materialien.

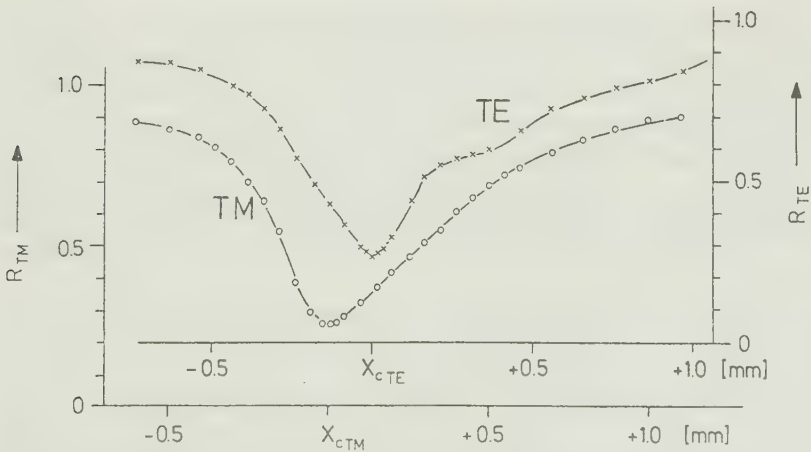


Abb. 7.9: TM- (TE-) Reflektivität der Probe (s. Abb. 7.8) in der Umgebung der Einkoppelstellen.

7.5 Bauelemente mit Metallgrenzflächen für die Integrierte Optik (Polarisator, TE-Koppler)

Das Interesse am Metall- begrenzten Wellenleiter hat in jüngster Zeit enorm zugenommen [165, 166, 169, 178-183] , um vermutlich die Grundlagen für elektro-optische Bausteine zu erarbeiten. Wir konnten demonstrieren, daß man auch andere Bauelemente mit einseitig von Metall begrenzten Wellenleitern konstruieren kann, die deren polarisationsabhängige "cut-off"-Eigenschaft ausnützen. (s.Abb. 7.2b: erst bei endlicher Schichtdicke kann sich eine $m = 0$ TE-Mode im Wellenleiter ausbreiten).

So konnten wir zeigen [184] , daß ein schmaler Silberstreifen, senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Moden auf einem sonst symmetrischen Wellenleiter, nur die $m = 0$ TH-Mode passieren läßt, wenn seine Dicke kleiner als die "cut-off"-Dicke ist (s.Abb. 7.2b). Ein Metallstreifen ist also ein Polarisator für optische Moden; seine Breite bestimmt die Transmission. Das war unser größtes experimentelles Problem, da die Dämpfung der $m = 0$ TH-Mode auch bei Silber bereits so groß ist [166] , daß die Breite des Metallstreifens kleiner als 10μ sein muß, um mehr als 10 % Transmission zu bekommen. Die Herstellung eines solchen Streifens sollte jedoch mit photolithographischer Maskentechnik kein Problem sein.

Unter dem Metallstreifen ist die Ausbreitung der $m = 0$ TE-Mode nicht möglich. Deshalb koppelt sie bereits an der Metallkante nach unten in das Substrat hinein aus. Auch hier ist wieder der umgekehrte Prozeß möglich: eine Metallkante wirkt als Koppler für die $m = 0$ TE-Mode, wenn das Laserlicht durch das Substrat hindurch auf den Metallrand fokussiert wird. Experimentell wurde dieser Koppler mit der Kante einer Silberschicht realisiert [184] .

8. Zusammenfassung

Die Methode der verhinderten Totalreflexion (ATR-Methode) zur Anregung elektromagnetischer Oberflächenwellen wird in der Anordnung mit Abstandsschicht zwischen Prisma und zu untersuchendem Material zu einer allgemeinen und genauen Methode der Bestimmung optischer Konstanten von Festkörpern entwickelt. Sie basiert auf der Anpassung berechneter an experimentelle ATR-Resonanzkurven.

Um diese zu messen, wird ein "ferngesteuertes" Reflektometer für den Spektralbereich von $0.2 - 5.6 \mu$ gebaut. Zur Probenpräparation im Ultrahochvakuum wird ein kommerzieller Pumpstand mit den nötigen Einbauten und Kontrollvorrichtungen versehen. Ein speziell konstruiertes "Flüssigkeitsprisma" erlaubt die Untersuchung von Einkristallen.

Die Berechnung theoretischer ATR-Kurven von anisotropen Substanzen wird durch die Entwicklung von Formeln ermöglicht, die allgemein Transmission und Reflexion eines Vielschichtsystems aus anisotropen Materialien mindestens orthorhombischer Symmetrie auszurechnen erlauben. (Die dielektrischen Hauptachsen liegen in bzw. senkrecht zur Schicht- und Einfallsebene.)

Tellur als Beispiel eines optisch einachsigen, einkristallinen Halbleiters wird im Bereich seiner Fundamentalabsorption untersucht. Mit definierter Genauigkeit werden die optischen Konstanten für beide kristallographische Richtungen bestimmt. Dadurch gelingt es, die unterschiedlichen Ergebnisse zweier Kramers-Kronig-Analysen von Reflektivitätswerten kritisch zu beurteilen. Die Dispersion der Oberflächenwellen auf Kryolith-Tellur-Grenzflächen wird diskutiert.

Zur Deutung und Interpretation der ATR-Untersuchungen von Falge [17, 40] an α -Quarz werden theoretische Spektren berechnet. Dadurch wird gezeigt, daß mit ATR-Spektroskopie ohne Luftspalt die Dispersion von Volumenpolaritonen und optischen Phononen bestimmt werden kann. Es wird vorgeschlagen, bei der Untersuchung von Oberflächenpolaritonen den Luftspalt zwischen Prisma und Kristall mit Interferenzstreifen gleicher chromatischer Ordnung

einzustellen, um so noch genauere Messungen zu ermöglichen, die die Bestimmung optischer Konstanten erlauben.

Der 1,5 eV-Interbandübergang von Aluminium wird intensiv an polykristallinen Aufdampfschichten untersucht. Eine starke Abhängigkeit ihrer optischen Konstanten vom Material der Abstandsschicht wird festgestellt. Nur mit Schichten aus Aufdampfglas zwischen Prisma und Aluminium kann die ATR-Methode mit den besten ellipsometrischen Messungen konkurrieren.

Um die Materialabhängigkeit zu deuten, wird die Oberflächenrauigkeit der Abstandsschichten mit verschiedenen Methoden bestimmt. Sie ist jedoch zu klein, um die ATR-Resonanzkurven wesentlich zu beeinflussen. Stattdessen wird vorgeschlagen, eine Abhängigkeit der Kristallitgröße in der Aluminiumschicht von derjenigen in der Abstandsschicht anzunehmen und unsere optischen Konstanten mit dem Zwei-Phasen-Modell (geordnete und ungeordnete Phase) von Hunderi [142, 143] zu erklären.

Wolfram wird im Sichtbaren und nahen Infrarot untersucht, um zu zeigen, daß auch auf Metallen in geeigneten Frequenzbereichen Oberflächenwellen vom Uller-Zenneck-Typ ($\epsilon_2 \gg \epsilon_1 > 0$) angeregt werden können.

Ebenfalls mit aufgedampften Wolframschichten wird ein ATR-Polarisator für das nahe Infrarot realisiert, der die Polarisationsabhängigkeit der Methode ausnützt.

Oberflächenwellen und optische Moden in dünnen, dielektrischen Schichten (optische Wellenleiter) sind miteinander verwandt. Dies zeigt sich besonders, wenn der Wellenleiter einseitig oder beidseitig von Metall begrenzt wird. Beide Fälle werden ausführlich diskutiert. Im Experiment wird der einseitig von Aluminium begrenzte Wellenleiter genauer untersucht. Daraus ergibt sich die Möglichkeit, einen Polarisator und (TE-)Koppler für die Integrierte Optik zu bauen, deren Funktion demonstriert wird.

Ein weiterer Koppler ("tapered clad coupler") wird gebaut, der prinzipiell nur aus dem Übergang von einem asymmetrischen zu einem symmetrischen Wellenleiter besteht. Mit einfachen experimentellen Mitteln läßt sich ein Wirkungsgrad bis zu 70 % erreichen.

Literaturverzeichnis

- 1 Madelung, O. : Festkörpertheorie II, Springer-Verlag
Berlin, Heidelberg, New York, 1972.
- 2 Otto, A.: Z.Phys. 216, 398 (1968)
- 3 Cohn, E.: Das elektromagnetische Feld. Leipzig 1900.
- 4 Uller, K.: Beiträge zur Theorie der elektromagnetischen
Strahlung. Dissertation Rostock 1903.
- 5 Zenneck, J.: Ann.Phys. Lpz. 23, 846 (1907)
- 6 Sommerfeld, A.: Ann.Phys. Lpz. 28, 665 (1909)
- 7 Fano, U.: Ann.Phys. Lpz. 32, 393 (1938);
J.Opt. Soc. Am. 31, 213 (1941)
- 8 Otto, A.: Optik 38, 566 (1973)
- 9 Burstein, E.; Hartstein, A.; Schoenwald, J.; Maradudin,
A.A.; Mills, D.L.; Wallis, R.F.: Proc.Taormina Res.Conf.
Structure of Matter, Polaritons, 2.bis 6.Oktober, Taormina
(Italien) 1972, wird veröffentlicht.
- 10 Otto, A.: Festkörperprobleme XIV, ed. H. J.Queisser; Vieweg,
Braunschweig 1974, S. 1
- 11 Arakawa, E.T.; Williams, M.W.; Hamm, R.N.; Ritchie, R.H.:
Phys.Rev. Lett. 31, 1127 (1973) Alexander, R.W.; Kovener, G.S.;
Bell, R.J.: Phys.Rev.Lett. 32, 154 (1974)
- 12 Huber, J.; Otto, A.; Sohler, W.: Verhandlungen der DPG, 8,
605 (1974)
- 13 Huber, J.; Otto, A.; Sohler, W.: in "Proceedings of the 12th
International Conference on the Physics of Semiconductors",
Teubner, Stuttgart 1974
- 14 Potter, R.F.: in "Optical Properties of Solids"; Nudelman, S.;
Mitra, S.S. (eds.), Plenum Press, New York 1969
- 15 z.B.: Mills, D.L.; Maradudin, A.A.: Phys. Rev.Lett. 31, 372
(1973)

- 16 Borstel, G.: Z. Naturf. 28a, 1055 (1973)
- 17 Falge, H.J., Dissertation, München 1974
- 18 Falge, H.J.; Otto, A.: Phys. stat. sol. (b) 56, 523 (1973)
- 19 Raether, H.: Springer Tracts in Modern Physics 38, 95 (1965)
- 20 Beaglehole, D.: Phys.Rev.Letters 22, 708 (1969)
- 21 Endriz, J.G.; Spicer, W.E.: Phys. Rev. B 4 , 4144 (1971)
- 22 Otto, A.: phys.stat.sol. 42, K37 (1970)
- 23 Kretschmann, E.; Raether, H.: Z.Naturf. 23a, 2135 (1968)
- 24 Kretschmann, E.: Z.Phys. 227, 412 (1969)
- 25 Tien, P.K.; Ulrich, R.; Martin, R.J.: Appl.Phys. Lett. 14, 291 (1969)
- 26 Otto, A.: Proc.Taormina Res.Conf.Structure of Matter, Polaritons, 2. bis 6. Oktober, Taormina (Italien) 1972, wird veröffentlicht.
- 27 Wolter, H.: in Hdb. der Physik, vol. 24, ed. S.Flügge, Springer, Berlin 1956
- 28 Sohler, W.: Opt. Comm. 10, 203 (1974)
- 29 Kretschmann, E.: Z.Physik, 241, 313 (1971)
- 30 Bösenberg, J.; Raether, H.: Verhandlungen der DPG, 8, 669 (1974)
- 31 Bösenberg, J.: Dissertation, Hamburg 1974
- 32 Barker, A.S., Jr.: Phys.Rev. B8, 5418 (1973)
- 33 Sohler, W.: Diplomarbeit, München 1970
- 34 Mosteller, L.P., Jr.; Wooten, F.: J.Opt. Soc. Am. 58, 511 (1968)
- 35 Schopper, H.: Z.Phys. 132, 146 (1952)
- 36 Borstel, G.: Z.Naturforschung 28a, 1055 (1973)
- 37 Bryksin, V.V.; Mirlin, D.N.; Reshina, I.I.: Fiz. Tverd. Tela 15, 1118 (1973)
- 38 Born, M.; Wolf, E.: Optics, Pergamon Press, London, New York, Paris, Los Angeles 1959

- 39 Szivessy, G.: Hdb. der Physik, vol. 20, Springer
Berlin 1928
- 40 Falge, H.J.; Otto, A.; Sohler, W.: phys.stat.sol. (b), 63,
259 (1974)
- 41 Wooten, F.: Optical Properties of Solids, Academic Press,
New York, London 1972
- 42 Sauerbrey, G.: Z.Phys. 155, 206 (1959)
- 43 Bodesheim, J.: Diplomarbeit München 1973
- 44 "Gupalon 30" ist ein wärmefester Kunstharzkleber (bis 250°C)
auf 2-Komponenten-Basis (Firma Gussolit). Er ermöglichte, die
Lampe mit aufgeklebtem BaF₂-Fenster zu evakuieren (10⁻⁷ torr)
und bei 200°C auszuheizen, um die inneren Glasoberflächen
wasserfrei zu machen. Anschließend wurde der Kolben mit
Spezialargon bis zu einem Druck von 500 torr gefüllt und zu-
geschmolzen. (Rezept von Herrn Sanden, Osramwerk Berlin)
- 45 Kohlrausch: Praktische Physik Bd. 1, 22. Auflage,
Teubner, Stuttgart, S. 567
- 46 Harbeke, G.: Optical Properties of Semiconductors in:
"Optical Properties of Solids, ed. F. Abelès, North-Holland,
Amsterdam, London 1972
- 47 Tauc, J.: Optical Properties of Non-Crystalline Solids in:
Optical Properties of Solids, ed. F. Abelès, North Holland,
Amsterdam, London 1972
- 48 Fischer, D.; Grosse, P.: Z. angew.Phys. 30, 154 (1970)
- 49 Arnold, J.-U.; Jaumann, J.: phys.stat.sol. (a) 3, 37 (1970)
- 50 Tutihasi, S.; Roberts, G.G.; Keezer, R.C.; Drews, R.E.:
Phys.Rev. 177, 1143 (1969)
- 51 Bammes, P.; Klucker, R.; Koch, E.E.; Tuomi, T.:
phys.stat.sol. (b) 49, 561 (1972)
- 52 Grosse, P.: Springer Tracts in Modern Physics, 48 (1969)
- 53 Asendorf, R.H.: J.chem.Phys. 27, 11 (1957)
- 54 Stuke, J.: in: The Physics of Te and Se, ed. W.C.Cooper,
Pergamon Press, 1969

- 55 Tolansky, S.: Multiple-Beam Interference Microscopy of Metals, Academic Press, London, New York 1970
- 56 Stuke, J.; Keller, H.: phys.stat.sol. (b) 7, 189 (1974)
- 57 Beissner, P.R.: Phys.Rev. 145, 479 (1966)
- 58 Treusch, J.; Sandrock, R.: phys.stat.sol. 16, 487 (1966)
- 59 Kramer, B.; Thomas, P.: phys.stat.sol. 26, 151 (1968)
- 60 Maschke, K.: phys.stat.sol. (b) 47, 511 (1971)
- 61 Sandrock, R.: Festkörperprobleme X, ed.O. Madelung; Vieweg, Braunschweig 1970, S. 283
- 62 Heine, V.: Solid State Phys. 24, 1 (1970)
- 63 Cohen, M.L.; Heine, V.: Solid State Phys. 24, 38 (1970)
- 64 Cohen, M.L.; Bergstresser, T.K.: Phys.Rev. 141, 789 (1966)
- 65 Huber, J.: Diplomarbeit, München 1975
- 66 Otto, A.: Z.angew.Phys. 27, 207 (1969)
- 67 Ruppin, R.: Solid State Comm. 8, 1129 (1970)
- 68 Fischer, B.; Bäuerle, D.; Buckel, W.J.: Solid State Comm. 14, 291 (1974)
- 69 Harrick, N.J.: Internal Reflection Spectroscopy, J.Wiley & Sons, New York 1967
- 70 Borstel, G.; Falge, H.J.; Otto, A.: Springer Tracts of Modern Physics 74, 107 (1974)
- 71 Buckel, W.J.; Falge, H.J.: private Mitteilungen
- 72 Bennett, J.M.: Conference on Optical Properties of Thin Films, 24-26 Sept. 1973 Southampton
Bennett, H.E.; Bennett, J.M.: Physics of Thin Films, vol4, Hass, G. and Thun, R.E. (eds.) Academic Press, New York 1967
- 73 Hartstein, A.; Burstein, E.; Brion, J.J.; Wallis, R.F.: Surface Sci. 34, 81 (1973)
Solid State Comm. 12, 1083 (1972)
- 74 Kurosawa, T.: J.Phys. Soc. Japan 16, 1298 (1961)
- 75 Lamprecht, G.; Merten, L.: phys.stat.sol. (b) 55, 33 (1973)

- 76 Kittel, Ch.: Introduction to Solid State Physics, 3rd edition, John Wiley and Sons, Inc., New York, London, Sydney 1967
- 77 Turbadar, T.: Proc.Phys.Soc. (London) 73, 40 (1959)
- 78 Turbadar, T.: Optica Acta 11, 207 (1964)
- 79 Sohler, W.; Otto, A.: 8th Annual Solid State Physics Conference, 5.-7.Jan. 1971
- 80 Braundmaier, A.J. Jr.; Arakawa, E.T.: J.Phys.Chem. Solids 35, 517 (1974)
- 81 Schott Mitteilung Nr. 61 - 1968
- 82 Schulz, L.G.: J. Chem.Phys. 17, 1153 (1949)
- 83 Shklyarevskii, I.N.; El-Shazli, A.F.A.; Govorushchenko, A.I.: Opt.Spectrosc. 32, 406 (1972)
- 84 D'Ans Lax: Taschenbuch für Chemiker und Physiker Bd.I, Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1967
- 85 Thelen, A. (Balzers, A.G. Liechtenstein): private Mitteilung
- 86 Bodesheim, J.; Otto, A.: Surface Science, wird veröffentlicht
- 87 Kröger, E.; Kretschmann, E.: Z.Phys. 237, 1 (1970)
- 88 Daudé, A.; Savary, A.; Robin, S.: J.Opt. Soc. Am. 62, 1 (1972)
- 89 Bennett, J.M.: private Mitteilung s.auch 72
- 90 Elson, J.M.; Ritchie, R.H.: Phys.Rev. B 4, 4129 (1971)
- 91 Stanford, J.L.; Bennett, H.E.; Bennett, J.M.; Ashley, E.J.; Arakawa, E.T.: Bull.Am.Phys.Soc. 13, 989 (1968)
- 92 Bennett, H.E.; Porteus, J.O.: J.Opt. Soc. Am. 51, 123 (1961)
- 93 D'Ans Lax: Taschenbuch für Chemiker und Physiker Bd. I, Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1967
- 94 Behrndt, K.H.: in Physics of Thin Films, vol.3, Hass, G. und Thun, R.E. (ed.); Academic Press, New York, London 1966
- 95 Thelen, A. (Balzers A.G. Liechtenstein): private Mitteilung
- 96 Pulker, H.K.; Jung, E.: Thin Solid Films 9, 57 (1971)
- 97 Bauer, E.: Dissertation, München 1955

- 98 Ritter, E.; Hoffmann, R.: J.Vac.Sci.Tech. 6, 733 (1969)
- 99 Hacmann, D.: Optica Acta 17, 659 (1970)
- 100 Hall, J.F.Jr.: J.Opt. Soc.Am. 47, 662 (1957)
- 101 Hall, J.F.Jr.; Ferguson, W.F.C.: J.Opt. Soc. Am. 45, 74 (1955)
- 102 Heisen, A.: Optik 18, 59 (1961)
- 103 Kinosita, K.; Nishibori, M.: J.Vac.Sci.Tech. 6, 730 (1969)
- 104 Heavens, O.S.: Physics of Thin Films, vol. 2, p. 193
New York, London: Academic Press 1964
- 105 Heavens, O.S.; Smith, S.D.: J.Opt. Soc. Am. 47, 469 (1957)
- 106 Rood, J.L.: J.Opt.Soc. Am. 39, 854 (1949)
- 107 Abelès, F.: J. Phys. Rad. 11, 310 (1950)
- 108 Morita, N.: J.Phys. Soc. Japan 11, 975 (1956)
- 109 Ritter, E.: ZAMP 12, 275 (1961)
- 110 Koch, H.: phys. stat. sol. 12, 533 (1965)
- 111 Fulker, H.K.; Jung, E.: Thin Solid Films 4, 219 (1969)
- 112 Schröder, H.; Schmidt, G.M.: Z.Angew. Phys. 18, 124 (1964)
- 113 Abelès, F.: Progr.in Opt. vol.II; Amsterdam, North-Holland Publ.Comp. 1963
- 114 Heitmann, W.; Koppelman, G.: Z.Angew.Phys. 23, 221 (1967)
- 115 Koppelman, G.; Krebs, K.; Leyendecker, H.: Z.Phys. 163, 557 (1961)
- 116 Pulker, H.K.; Zaminer, Ch.: Thin Solid Films 5, 421 (1970)
- 117 Schott Datenblatt: Aufdampfglas 8329
- 118 Ehrenreich, H.; Philipp, H.R.; Segall, B.: Phys.Rev. 132, 1918 (1963)
- 119 Bennett, H.E.; Silver, M.; Ashley, E.J.: J.Opt.Soc.Am. 53, 1089 (1963)
- 120 Hass, G.; Waylonis, J.E.: J.Opt.Soc.Am. 51, 719 (1961)
- 121 Golovashkin, A.J.; Motulevich, G.P.; Shubin, A.A.:
Soviet Phys. JETP 11, 38 (1960)

- 122 Schulz, L.G.: J.Opt.Soc.Am. 44, 357 (1954)
- 123 Schulz, L.G.; Tangherlini, F.R.: J.Opt. Soc.Am. 44, 362 (1954)
- 124 Madden, R.P.; Canfield, L.R.; Hass, G.: J.Opt.Soc.Am. 53, 620 (1963)
- 125 Fane, R.W.; Neal, W.E.J.: J.Opt.Soc.Am. 60, 790 (1970)
- 126 Feuerbacher, B.P.; Steinmann, W.: Opt.Comm. 1, 81 (1969)
- 127 Powell, C.J.: J.Opt.Soc.Am. 60, 78 (1970)
- 128 Shklyarevskii, I.N.; Yarovaya, R.G.: Optics and Spectroscopy 16, 45 (1964)
- 129 Lenham, A.P.; Treherne, D.M.: J.Opt.Soc.Am. 56, 752 (1966)
- 130 Sohler, W.; Otto, A.: 8th Annual Solid State Physics Conference, 5.-7.Jan. 1971, Manchester
- 131 Dresselhaus, G.; Dresselhaus, M.S.; Beaglehole, D.: NBS 3rd Material Research Symposium, Nov. 3-6, 1969
- 132 Hughes, A.J.; Jones, D.; Lettington, A.H.: J.Phys. C (Solid State Phys.) 2, 102 (1969)
- 133 Biondi, M.A.; Guobadia, A.I.: Phys. Rev. 166, 667 (1968)
- 134 Bos, L.W.; Lynch, D.W.: Phys. Rev. Lett. 25, 156, (1970)
- 135 Liljenvall, H.G.; Mathewson, A.G.; Myers, H.P.: Sol.State Comm. 9, 169 (1971)
- 136 Mathewson, A.G.; Myers, H.P.: J.Phys. F (Metal Physics) 2, 403 (1972)
- 137 Mathewson, A.G.; Myers, H.P.: Physica Scripta 4, 291 (1971)
- 138 Ashcroft, N.W.; Sturm, K.: Phys.Rev. B3,1898 (1971)
- 139 Brust, D.: Phys. Lett. 31A, 289 (1970)
- 140 Brust, D.: Phys.Rev. B2, 818 (1970)
- 141 Bernland, L.G.; Hunderi, O.D.; Myers, H.P.: Phys.Rev.Lett. 31, 363 (1973)
- 142 Hunderi, O.D.: Sol.State Comm. 12, 237 (1973)
- 143 Hunderi, O.D.: Phys.Rev. B7, 3419 (1973)

- 144 O'Shea, K.R.; Fane, R.W.: Sol.State Comm. 10, 1185 (1972)
- 145 Harrison, W.A.: Phys.Rev. 147, 467 (1966)
- 146 Ashcroft, N.W.: Phil.Mag. 8, 2055 (1963)
- 147 Hunderi, O.D.: private Mitteilung
- 148 Böttcher, C.J.F.: Rec.trav.chim. 64, 47 (1945)
- 149 Maxwell-Garnett, J.C.: Trans.Roy.Soc. (London) 203A, 385 (1904)
- 150 in Analogie zu: Couzineau, M.-M.; Theye, M.-L.: Phys.Rev. B 2, 3060 (1970)
- 151 Espe, W.: Werkstoffe der Hochvakuumtechnik, Bd. I; VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1959
- 152 Nomerovannaya, L.V.; Kirillova, M.M.; Noskov, M.M.: Soviet Physics JETP 33, 405 (1971)
- 153 Carroll, J.J.; Melmed, A.J.: J.Opt.Soc.Am. 61, 470 (1971)
- 154 Roberts, S.: Phys.Rev. 114, 104 (1959)
- 155 Barnes, B.T.: J.Opt. Soc. Am. 56, 1546 (1966)
- 156 Otto, A.: EPS-Study Conference "Metal Surfaces", Hindsås, August 13-17 (1973), Schweden
- 157 Otto, A.: Optik 29, 246 (1969)
- 158 Kliewer, K.L.; Fuchs, R.: Phys.Rev. 144, 495 (1966)
- 159 Tien, P.K.; Smolinsky, G.; Martin, R.J.: Appl.Optics 11, 637 (1972)
- 160 Miller, S.E.: Bell Syst.techn.J. 48, 2059 (1969)
- 161 Miller, S.E.: IEEE J.Quantum Electron., Q.E. 8, 199 (1972)
- 162 Tien, P.K.: Scientific American, May 1974
- 163 Ulrich, R.: NTG-Tagung: Nachrichtenübertragung mit Laser, 2.-4.Okt.1972, Ulm
- 164 Tien, P.K.; Ulrich, R.: J.Opt.Soc. Am. 60, 1325 (1970)
- 165 Garmire, E.M.; Stoll, H.: IEEE-Q.E. 8, 763 (1972)
- 166 Reisinger, A.: Appl.Opt. 5, 1015 (1973)
- 167 Otto, A.; Sohler, W.: Opt.Comm. 3, 254 (1971)

- 168 Bergstein, L.; Studman, C.: Appl.Opt. 5, 9 (1966)
- 169 Suematsu, Y.; Hakuta, M.; Furuya, K.; Chiba, K.; Hasumi, R.: Appl.Phys.Lett. 21, 291 (1972)
- 170 Hornauer, D.; Raether, H.: Opt.Comm. 7, 297 (1973)
- 171 Opt.Soc.Am.: Tagung über Integrierte Optik, Jan. 1974, New Orleans
- 172 Dakss, M.L.; Kuhn, L.; Heidrich, P.F.; Scott, B.A.: Appl.Phys. Lett. 16, 523 (1970)
- 173 Tien, P.K.; Martin, R.J.: Appl.Phys.Lett. 18, 398 (1971)
- 174 Sohler, W.: J.Appl. Phys. 44, 2343 (1973)
- 175 Tien, P.K.; Ulrich, R.: J.Opt.Soc.Am.60, 1325 (1970)
- 176 Tien, P.K.: Appl.Opt. 10, 2395 (1971)
- 177 Ulrich, R.; Weber, H.P.: Appl.Opt. 11, 428 (1972)
- 178 Hamasaki, J.; Nosu, K.: IEEE-Q.E. 10, 822 (1974)
- 179 Polky, J.N.; Mitchell, G.L.: J.Opt.Soc.Am. 64, 274 (1974)
- 180 Kaminow, I.P.; Mammel, W.L.; Weber, H.P.: App.Opt. 13, 396 (1974)
- 181 Batchman, T.E.; Rashleigh, S.C.: IEEE-Q.E.-8, 848 (1972)
- 182 Takano, T.; Hamasaki, J.: IEEE-Q.E.-8, 206 (1972)
- 183 Lotsch, H.K.V.: IEEE-Q.E.-9, 780 (1973)
- 184 Hennig, P.; Sohler, W.: Tagung: Integrierte Optik, München, Feb. 1974 (Veranstalter: R.Ulrich und R.TH.Kersten)
unveröffentlicht
- 185 Drude, P.: Ann.d.Phys. 39, 481 (1859)

Nach Abschluß dieser Arbeit gilt mein Dank allen, die sie mit Rat und Tat gefördert haben. Besonders danke ich

Herrn Prof.W.Rollwagen für die Möglichkeit, in seinem Institut zu arbeiten und für sein Interesse am Fortgang der Untersuchungen.

Herrn Universitätsdozent Dr.A.Otto , der als "geistiger Vater" der ATR-Methode diese Arbeit betreute und in vielen Diskussionen wertvolle Anregungen und Ratschläge gab.

meinen Kollegen Dr. H.J.Falge, J.Bodesheim, J.Huber und P.Hennig für gute Zusammenarbeit bei gemeinsamen Untersuchungen.

den Herren der Werkstatt unter der Leitung von Herrn Pfisterer für die saubere Herstellung zahlreicher Präzisionsbauteile.

Herrn W.Fellner für viele, sorgfältig ausgeführte Zeichnungen.

den Damen und Herren der Instituts- und Sektionsverwaltung, namentlich Frau F.Orth, für viele Schreibarbeiten und manche Unterstützung.

Frau U.Stork für das sorgfältige Tippen dieser Arbeit.

allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Otto für viele Diskussionen und kameradschaftliche Hilfe, wenn Not am Mann war.

der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die diese Arbeit mit Sach- und Personalmitteln großzügig finanzierte.

der Bayerischen Akademie der Wissenschaften für die Zuteilung von Rechenzeit im Leibniz-Rechenzentrum.

L e b e n s l a u f

- Geburt: 19.1.1945 in Wangen/Allg.
- Eltern: Dipl.-Ing. K. Sohler und Ehefrau Hildegard,
geb. Walter
- Schule: 1951 - 55 Volksschule in Marl/Westf.
1955 - 64 Gymnasium in Marl/Westf.
1964 Abitur
- Studium: 1964 - 70 Studium der Physik an der Universität
München; 1970 Diplom in Physik
- Beruf: 1970 - 74 wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut
für Experimentalphysik, Lehrstuhl Prof. Rollwagen,
München;
Doktorarbeit
- Familie: 1970 Heirat;
Ehefrau: Bärbel Sohler, geb. Feldmann;
1973 Geburt unseres Sohnes Christian

